

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-51628

(P2004-51628A)

(43) 公開日 平成16年2月19日 (2004.2.19)

(51) Int.Cl.⁷

C07D 213/30

A01N 43/40

A01N 43/42

A01N 47/12

A01N 47/16

F 1

C07D 213/30

A01N 43/40

A01N 43/42

A01N 43/42

A01N 47/12

I O 1 B

I O 1

I O 2

I O 2

テーマコード (参考)

4 C O 5 5

4 C O 6 3

4 H O 1 1

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 52 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-149044 (P2003-149044)

(22) 出願日 平成15年5月27日 (2003.5.27)

(31) 優先権主張番号 特願2002-154605 (P2002-154605)

(32) 優先日 平成14年5月28日 (2002.5.28)

(33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 000000354

石原産業株式会社

大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号

(72) 発明者 菊川 弘司

滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原

産業株式会社中央研究所内

(72) 発明者 中山 仁志

滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原

産業株式会社中央研究所内

(72) 発明者 宮下 聖子

滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原

産業株式会社中央研究所内

(72) 発明者 永山 宗一郎

滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原

産業株式会社中央研究所内

最終頁に続く

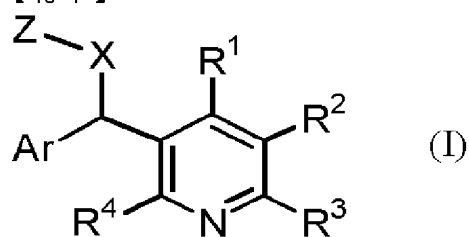
(54) 【発明の名称】 ピリジン系化合物又はその塩、それらの製造方法及びそれらを含む除草剤

(57) 【要約】

【課題】 除草剤の新規有効成分化合物を提供する。

【解決手段】 式 (I) ；

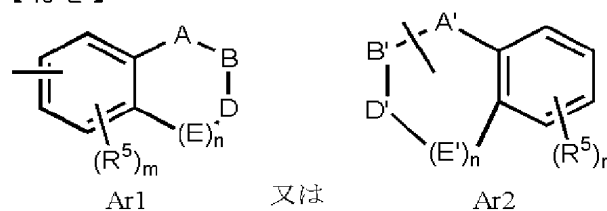
【化 1】



10

【式中、Arは

【化 2】



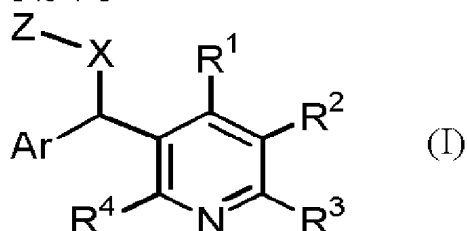
20

【特許請求の範囲】

【請求項1】

式(I)：

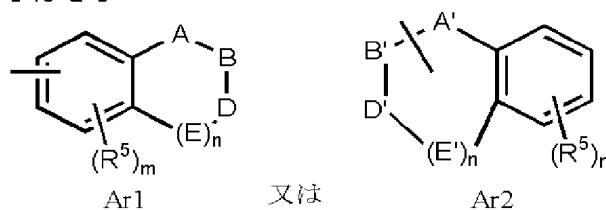
【化1】



10

〔式中、Arは

【化2】



であり、A、B、D、E、A'、B'、D'及びE'は各々酸素原子、硫黄原子、-N(R⁶)-、=N-、=C(R⁶)-又は-C(R⁶)₂-（このR⁶は同一であっても異なってもよい）であり、但し、-A'-B'-D'-(E')_n-が環内の二重結合と共役してベンゼン環を形成する場合を除き、Xは酸素原子又は硫黄原子であり、Zは水素原子、置換されてもよいアルキル、-CH₂CN、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、-COR⁷、-CSR⁷、-SOR⁷、-SO₂R⁷、R⁸で置換されてもよいフェニル又はR⁸で置換されてもよいビリジルであり、R¹はハロゲン、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、シアノ、-OR⁹、-SR⁹、-SOR⁹又は-SO₂R⁹であり、R²は水素原子、ハロゲン、アルキル、ハロアルキル、シアノ、ホルミル、-CO₂R⁹、-OR⁹又は-SR⁹であり、R³及びR⁴は各々水素原子、ハロゲン又はアルキルであり、R⁵はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、ニトロ、-OR⁹、-SR⁹、-SOR⁹、-SO₂R⁹又は-N(R⁹)₂（このR⁹は同一であっても異なってもよい）であり、R⁶は水素原子、ハロゲン、アルキル又はハロアルキルであり、R⁷は置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、R⁸で置換されてもよいフェニル、R⁸で置換されてもよいナフチル、R⁸で置換されてもよい複素環基、-CO₂R⁹、-OR⁹、-SR⁹又は-N(R⁹)₂（このR⁹は同一であっても異なってもよく、2つのR⁹が一緒になって環を形成することもでき、更には、環を形成する際に当該環中に酸素原子及び/又は硫黄原子を含有していてもよい）であり、R⁸はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、ニトロ、シアノ又は-OR⁹であり、R⁹は水素原子、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、R⁸で置換されてもよいフェニル又はR⁸で置換されてもよいビリジルであり、mは0～3であり、nは0又は1であり、rは0～4であり、m又はrが2以上である場合、R⁵は同一であっても異なってもよい、但し、ArがAr1であり、A及びBが各々=C(R⁶)-又は-C(R⁶)₂-であり、Dが硫黄原子であり、Xが酸素原子であり、Zが水素原子であり、且つnが0である場合を除く〕で表されるビリジン系化合物又はその塩。

20

30

40

【請求項2】

Z、R¹、R⁵、R⁷及びR⁹に含まれる置換されてもよいアルキル、置換されてもよい

50

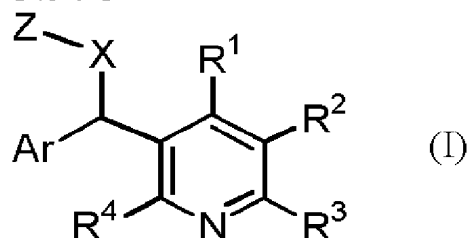
アルケニル又は置換されてもよいアルキニルのその置換基が、ハロゲン、 $C_1 - 6$ アルコキシ、 $C_1 - 6$ アルキルチオ、置換されてもよいアミノ、トリメチルシリル、 $C_3 - 6$ シクロアルキル、エポキシ、 R^8 で置換されてもよいフェニル、 R^8 で置換されてもよいビリジル、 R^8 で置換されてもよいナフチルであり、前記置換されてもよいアミノのその置換基が、 $C_1 - 6$ アルキル、 $C_2 - 6$ アルケニル、 $C_1 - 6$ アルキルカルボニル、 $C_1 - 6$ アルコキシカルボニル、ベンゼン環部分が R^8 で置換されてもよいベンジル、ベンゼン環部分が R^8 で置換されてもよいベンゾイル、 $-SO_2R^9$ であり、 Σ 、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれる置換されてもよいシクロアルキルのその置換基が、ハロゲン、 $C_1 - 6$ アルキル、 $C_1 - 6$ ハロアルキル、 $C_1 - 6$ アルコキシ、 $C_1 - 6$ アルキルチオ、 R^8 で置換されてもよいフェニルである、前記請求項 1 に記載のビリジン系化合物又はその塩。

10

【請求項 3】

式 (I) ;

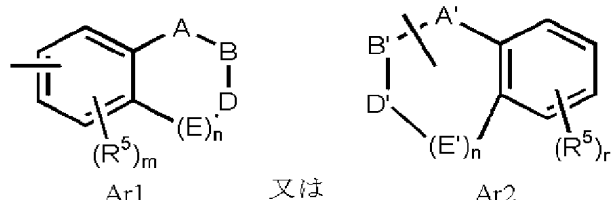
【化 8】



20

【式中、Ar は

【化 4】



であり、A、B、D、E、A'、B'、D' 及び E' は各々酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^6)-$ 、 $=N-$ 、 $=C(R^6)-$ 又は $-C(R^6)_2-$ (この時の R^6 は同一であっても異なってもよい) であり、但し、 $-A'-B'-D'-(E')_n-$ が環内の二重結合と共役してベンゼン環を形成する場合を除き、X は酸素原子又は硫黄原子であり、 Σ は水素原子、置換されてもよいアルキル、 $-CH_2CN$ 、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 $-COR^7$ 、 $-CSR^7$ 、 $-SOR^7$ 、 $-SO_2R^7$ 、 R^8 で置換されてもよいフェニル又は R^8 で置換されてもよいビリジルであり、 R^1 はハロゲン、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、シアノ、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 、 $-SOR^9$ 又は $-SO_2R^9$ であり、 R^2 は水素原子、ハロゲン、アルキル、ハロアルキル、シアノ、ホルミル、 $-CO_2R^9$ 、 $-OR^9$ 又は $-SR^9$ であり、 R^3 及び R^4 は各々水素原子、ハロゲン又はアルキルであり、 R^5 はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、ニトロ、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 、 $-SOR^9$ 、 $-SO_2R^9$ 又は $-N(R^9)_2$ (この時の R^9 は同一であっても異なってもよい) であり、 R^6 は水素原子、ハロゲン、アルキル又はハロアルキルであり、 R^7 は置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 R^8 で置換されてもよいフェニル、 R^8 で置換されてもよいナフチル、 R^8 で置換されてもよい複素環基、 $-CO_2R^9$ 、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 又は $-N(R^9)_2$ (この時の R^9 は同一であっても異なってもよく、2つの R^9 が一緒になって環を形成することもあり、更には、環を形成する際に当該環中に酸素原子及び/又は硫黄原子を

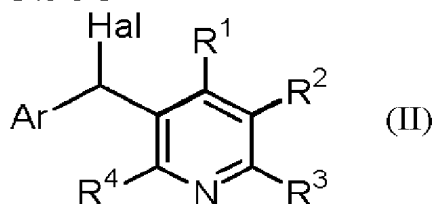
30

40

50

含有していてもよい)であり、 R^8 はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、ニトロ、シアノ又は $-OR^9$ であり、 R^9 は水素原子、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 R^8 で置換されてもよいフェニル又は R^8 で置換されてもよいピリジルであり、 m は0~3であり、 n は0又は1であり、 r は0~4であり、 m 又は r が2以上である場合、 R^5 は同一であっても異なってもよい、但し、 A と r が A と1であり、 A 及び B が各々 $=C(R^6)-$ 又は $-C(R^6)_2-$ であり、 D が硫黄原子であり、 X が酸素原子であり、 Z が水素原子であり、且つ n が0である場合を除く]で表されるピリジン系化合物又はその塩の製造方法であって、(1)式(II)；

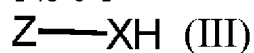
【化5】



10

[式中、 A と r 、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りであり、 Hal はハロゲンである]で表される化合物と、式(III)；

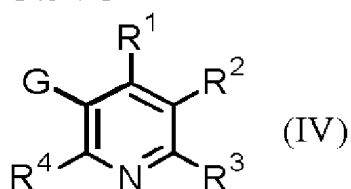
【化6】



20

[式中、 X 及び Z は前述の通りである]で表される化合物とを反応させるか、(2)式(I V)；

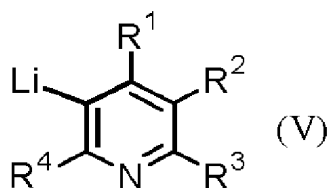
【化7】



30

[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りであり、 G は水素原子又はハロゲンである]で表される化合物と、リチオ化剤とを反応させて式(V)；

【化8】



[式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りである]で表される化合物を得、次いでこのものと式(VI)；

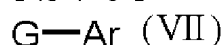
40

【化9】



[式中、 A と r は前述の通りである]で表される化合物とを反応させるか、(3)式(VI I)；

【化10】



[式中、 A と r 及び G は前述の通りである]で表される化合物と、リチオ化剤とを反応させ

50

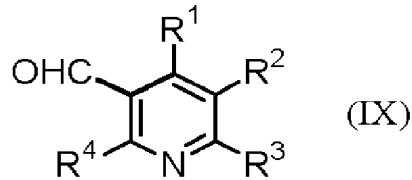
て式 (VIII) ;

【化 1 1】



〔式中、Arは前述の通りである〕で表される化合物を得、次いでこのものと式 (IX)

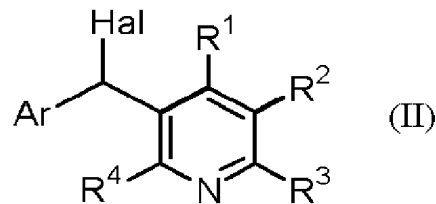
【化 1 2】



10

〔式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りである〕で表される化合物と反応させるか、(4) 式 (I I) ;

【化 1 3】



20

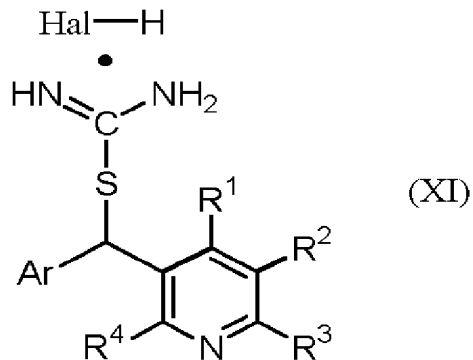
〔式中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及び Hal は前述の通りである〕で表される化合物と、式 (X) ;

【化 1 4】



で表される化合物とを反応させて式 (XI) ;

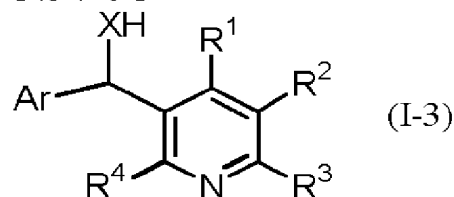
【化 1 5】



30

〔式中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及び Hal は前述の通りである〕で表される化合物を得、次いでこのものを加水分解するか、(5) 式 (I-3) ;

【化 1 6】

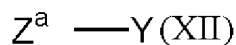


40

〔式中、Ar、X、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りである〕で表される化合物と 50

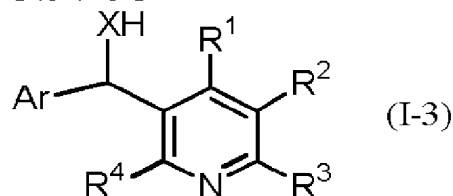
、式 (X I I) ;

【化 1 7】



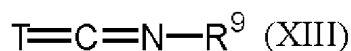
〔式中、 Z^a は置換されてもよいアルキル、 $-CH_2CN$ 、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 $-COR^7$ 、 $-CSR^7$ 、 $-SOR^7$ 、 $-SO_2R^7$ 、 R^8 で置換されてもよいフェニル又は R^8 で置換されてもよいピリジル (R^7 及び R^8 は前述の通り) であり、 Y はハロゲン又は有機スルホン酸残基である〕で表される化合物とを反応させるか、或は (6) 式 (I-3) ;

【化 1 8】



〔式中、 Ar 、 X 、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りである〕で表される化合物と、式 (X I I I) ;

【化 1 9】



〔式中、 R^9 は前述の通りであり、 T は酸素原子又は硫黄原子である〕で表される化合物とを反応させることを特徴とする、方法。

【請求項 4】

請求項 1 又は 2 のピリジン系化合物又はその塩を有効成分として含有する除草剤。

【請求項 5】

請求項 1 又は 2 のピリジン系化合物又はその塩の有効成分量を施用して有害雑草を防除する方法。

【請求項 6】

請求項 1 又は 2 のピリジン系化合物又はその塩の少なくとも 1 種と、他の除草剤の有効成分化合物の少なくとも 1 種とを含有する混合除草性組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、除草剤の有効成分として有用な新規ピリジン系化合物に関する。

【0002】

【従来の技術】

WO 95 / 29893 には、3-置換ピリジン系化合物が開示されているが、後記式 (I) 中の Ar で表される置換基などによって区別される。また、米国特許第 4, 611, 059 号明細書にはピリジルで置換されたベンゾチオフェン系化合物が開示されているが、当該特許に含まれる化合物は本願から除外されている。

【0003】

【特許文献 1】

国際公開公報 WO 95 / 29893

【特許文献 1】

米国特許第 4, 611, 059 号明細書

【0004】

【発明が解決しようとする課題とその手段】

本願発明者等は、より優れた除草剤を見出すべくピリジン系化合物につき種々検討した結果、本発明を完成した。すなわち本発明は、式 (I) ;

10

20

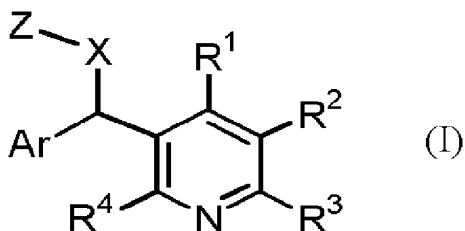
30

40

50

【0005】

【化20】

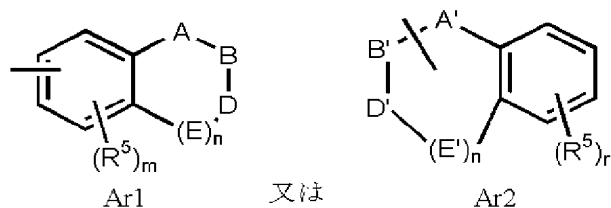


【0006】

【式中、Arは

【0007】

【化21】



【0008】

であり、A、B、D、E、A'、B'、D'及びE'は各々酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^6)-$ 、 $=N-$ 、 $=C(R^6)-$ 又は $-C(R^6)_2-$ （このR⁶は同一であっても異なってもよい）であり、但し、 $-A'-B'-D'-(E')_n-$ が環内の二重結合と共役してベンゼン環を形成する場合を除き、Xは酸素原子又は硫黄原子であり、Zは水素原子、置換されてもよいアルキル、 $-CH_2CN$ 、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 $-COR^7$ 、 $-CSR^7$ 、 $-SOR^7$ 、 $-SO_2R^7$ 、R⁸で置換されてもよいフェニル又はR⁸で置換されてもよいビリジルであり、R¹はハロゲン、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、シアノ、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 、 $-SOR^9$ 又は $-SO_2R^9$ であり、R²は水素原子、ハロゲン、アルキル、ハロアルキル、シアノ、ホルミル、 $-CO_2R^9$ 、 $-OR^9$ 又は $-SR^9$ であり、R³及びR⁴は各々水素原子、ハロゲン又はアルキルであり、R⁵はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、ニトロ、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 、 $-SOR^9$ 、 $-SO_2R^9$ 又は $-N(R^9)_2$ （このR⁹は同一であっても異なってもよい）であり、R⁶は水素原子、ハロゲン、アルキル又はハロアルキルであり、R⁷は置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、R⁸で置換されてもよいフェニル、R⁸で置換されてもよいナフチル、R⁸で置換されてもよい複素環基、 $-CO_2R^9$ 、 $-OR^9$ 、 $-SR^9$ 又は $-N(R^9)_2$ （このR⁹は同一であっても異なってもよく、2つのR⁹が一緒になって環を形成することもあり、更には、環を形成する際に当該環中に酸素原子及び／又は硫黄原子を含有していてもよい）であり、R⁸はハロゲン、アルキル、ハロアルキル、ニトロ、シアノ又は $-OR^9$ であり、R⁹は水素原子、置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、R⁸で置換されてもよいフェニル又はR⁸で置換されてもよいビリジルであり、mは0～3であり、nは0又は1であり、rは0～4であり、m又はrが2以上である場合、R⁵は同一であっても異なってもよい、但し、ArがAr1であり、A及びBが各々 $=C(R^6)-$ 又は $-C(R^6)_2-$ であり、Dが硫黄原子であり、Xが酸素原子であり、Zが水素原子であり、且つnが0である場合を除く]で表されるビリジン系化合物又はその塩、それらの製造方法、それらを含む除草剤及びそれらの有効成分量を施用して有害雑草を防

10

20

30

40

50

除する方法等に関する。

【0009】

Ⅷ、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれる置換されてもよいアルキル、置換されてもよいアルケニル又は置換されてもよいアルキニルのその置換基としては、例えばハロゲン、 C_{1-6} アルコキシ、 C_{1-6} アルキルチオ、置換されてもよいアミノ、トリメチルシリル、 C_{3-6} シクロアルキル、エポキシ、 R^8 で置換されてもよいフェニル、 R^8 で置換されてもよいビリル、 R^8 で置換されてもよいナフチルなどが挙げられる（ R^8 は前述の通り）。また、前記置換されてもよいアミノのその置換基としては、例えば C_{1-6} アルキル、 C_{2-6} アルケニル、 C_{1-6} アルキルカルボニル、 C_{1-6} アルコキシカルボニル、ベンゼン環部分が R^8 で置換されてもよいベンジル、ベンゼン環部分が R^8 で置換されてもよいベンゾイル、 $-SO_2R^9$ などが挙げられる（ R^8 及び R^9 は前述の通り）。これら置換基の置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、それらの置換基は同一でも相異なっているもよい。

10

【0010】

Ⅷ、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれる置換されてもよいシクロアルキルのその置換基としては、例えばハロゲン、 C_{1-6} アルキル、 C_{1-6} ハロアルキル、 C_{1-6} アルコキシ、 C_{1-6} アルキルチオ、 R^8 で置換されてもよいフェニルなどが挙げられる（ R^8 は前述の通り）。これら置換基の置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、それらの置換基は同一でも相異なっているもよい。

20

【0011】

Ⅷ、 R^7 及び R^9 に含まれる R^8 で置換されてもよいフェニル、 R^8 で置換されてもよいナフチル又は R^8 で置換されてもよい複素環基の R^8 の置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、それらの置換基は同一でも相異なっているもよい。

【0012】

Ⅷ、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 に含まれるアルキル又はアルキル部分としては、各々炭素数1～6の直鎖又は分枝状のもの、例えばメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ターシャリーブチル、ペンチル、ヘキシルなどが挙げられる。

【0013】

Ⅷ、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれるアルケニル又はアルケニル部分としては、各々炭素数2～6の直鎖又は分枝状のもの、例えばビニル、プロペニル、イソプロペニル、ブテニル、ペンテニル、ヘキセニルなどが挙げられる。

30

【0014】

Ⅷ、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれるアルキニル又はアルキニル部分としては、各々炭素数2～6の直鎖又は分枝状のもの、例えばエチニル、プロピニル、ブチニル、イソブチニル、ペンチニル、ヘキシニルなどが挙げられる。

【0015】

Ⅷ、 R^5 、 R^7 及び R^9 に含まれるシクロアルキル又はシクロアルキル部分としては、炭素数3～6のもの、例えばシクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。

40

【0016】

Ⅷ、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 に含まれるハロゲンとしては、弗素、塩素、臭素又は沃素の各原子が挙げられる。置換基としてのハロゲンの数は1又は2以上であってよく、2以上の場合、各ハロゲンは同一でも相異なっているもよい。また、ハロゲンの置換位置はいずれの位置でもよい。

【0017】

R^7 に含まれる複素環基としては、例えば酸素、硫黄及び窒素の各原子からなる群より選ばれた少なくとも1種の原子を1～3含有する5又は6員複素環基が挙げられる。複素環部分は、飽和又は不飽和のどちらでもよい。複素環基の具体例としては、例えばチエニル、フリル、ピロリル、チアゾリル、イソチアゾリル、オキサゾリル、イソキサゾリル、イ

50

ミダゾリル、ピラゾリル、チアジアゾリル、トリアゾリル、ピリジル、ピリダジニル、ピリミジニル、ピラジニル、トリアジニル、ジチアゾリル、オキサジニル、チアジニル、モルホリニル、テトラヒドロフラニル、ピロリジニル、ジヒドロチアゾリル、ジヒドロオキサゾリル、ジヒドロイソオキサゾリル、ジヒドロイミダゾリル、ジヒドロピラゾリル、テトラヒドロピリジニル、ピペリジニル、テトラヒドロピリミジニル、ピペラジニルなどが挙げられる。

【0018】

R^7 に含まれる $-N(R^9)_2$ の2つの R^9 が一緒になって環を形成する場合、例えばアゼチジニル、ピロリジニル、イミダゾリジニル、ピラゾリジニル、ピペリジニル、ピペラジニル、モルホリニル、チオモルホリニルなどを形成する。

10

【0019】

前記式 (I) で表されるピリジン系化合物は、塩を形成することが可能である。その塩としては、農業上許容されるものであればあらゆるものが含まれるが、例えばナトリウム塩、カリウム塩のようなアルカリ金属塩；マグネシウム塩、カルシウム塩のようなアルカリ土類金属塩；塩酸塩、過塩素酸塩、硫酸塩、硝酸塩のような無機酸塩；酢酸塩、メタンスルホン酸塩のような有機酸塩などが挙げられる。

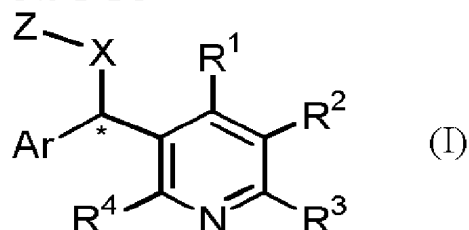
【0020】

前記式 (I) で表されるピリジン系化合物には、下記式 (I)；

【0021】

【化22】

20



【0022】

中の不斉炭素 (*) 及び／又は式 (I) 中の各置換基の種類に応じて存在する不斉炭素によって光学異性体が存在し得、また、式 (I) 中の各置換基の種類に応じて存在する炭素-炭素二重結合などによって幾何異性体が存在し得るが、本発明には各異性体及び異性体混合物の双方が含まれる。例えば、 Z 、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び／又は R^9 が置換されたシクロアルキルである場合、 Z 、 R^1 、 R^7 及び／又は R^9 がエポキシで置換されたアルキルである場合、A、B、D、E、A'、B'、D' 及び／又は E' 中の $-C(R^6)_2-$ において R^6 が各々異なる置換基である場合などにおいて光学異性体が存在し、また、式 (I) 中の Z 、 R^1 、 R^5 、 R^7 及び／又は R^9 が置換されてもよいアルケニルである場合などにおいて幾何異性体が存在する。尚、特に記載しない限り、後述する化合物は各異性体を分離する為の特別な操作を施していない化合物である。

30

【0023】

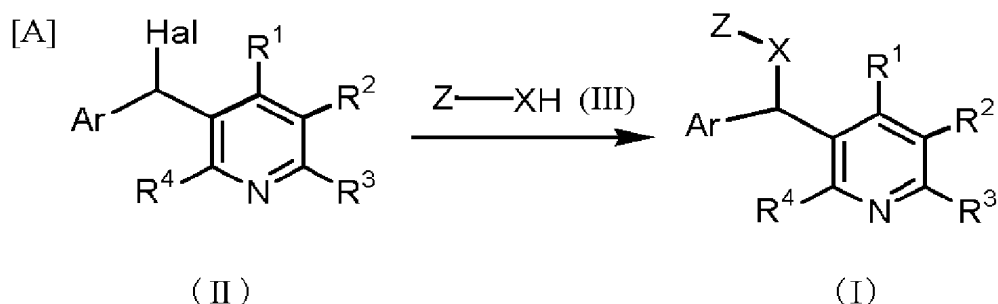
前記式 (I) で表されるピリジン系化合物又はその塩（以下本発明化合物と略す）は、以下の反応 [A] ～ [F] 或いは通常の方法に従って製造することができる。

40

【0024】

式 (I) で表される化合物は、下記の反応 [A] に従って、式 (II) と式 (III) とを反応させることにより製造することができる。

【化23】



10

【0025】

反応〔A〕中、Ar、X、Z、R¹、R²、R³及びR⁴は前述の通りであり、Halはハロゲンである。

【0026】

反応〔A〕は、通常、塩基及び溶媒の存在下で行う。

【0027】

反応〔A〕で使用する塩基は、例えば水素化ナトリウム、水素化カリウムのようなアルカリ金属水素化物；ノルマルブチルリチウム、ターシャリーブチルリチウムのようなアルキルリチウム；トリエチルアミン、ピリジン、1，8-ジアザビシクロ〔5．4．0〕-7-ウンデセンのような3級アミン；水酸化ナトリウム、水酸化カリウムのようなアルカリ金属水酸化物；炭酸ナトリウム、炭酸カリウムのようなアルカリ金属炭酸塩；ナトリウムメトキシド、カリウムターシャリーブトキシドのようなアルコール塩などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

20

【0028】

反応〔A〕で使用する溶媒は、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えばN，N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドのような極性非プロトン性溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフランのようなエーテル類などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0029】

反応〔A〕は、必要に応じ不活性ガスの存在下で行う。

【0030】

反応〔A〕で使用する不活性ガスは、例えば窒素、ヘリウム、アルゴンなどから適宜選択する。

30

【0031】

反応〔A〕の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常-80～+120℃、望ましくは0～100℃であり、反応時間は通常1～24時間、望ましくは2～6時間である。

但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなどして個別に決定することができる。

【0032】

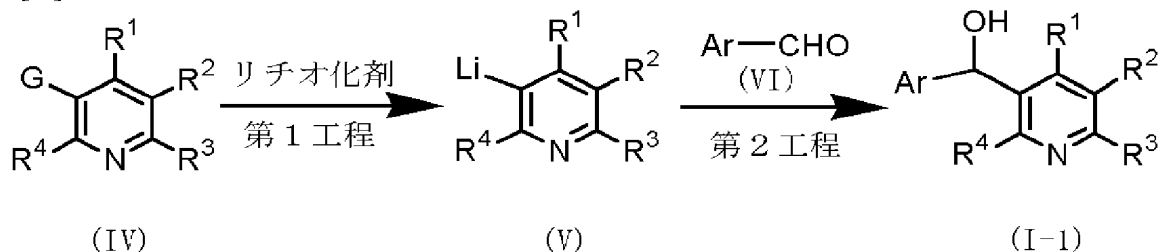
前述の式（I）で表される化合物のうち式（I-1）で表される化合物は、下記反応〔B〕に従って（1）式（IV）で表される化合物とリチオ化剤とを反応させて式（V）を得る第1工程及び（2）式（V）で表される化合物と式（VI）で表される化合物とを反応させて式（I-1）で表される化合物を得る第2工程により、製造することができる。

40

【0033】

【化24】

[B]



10

【0034】

反応[B]中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りであり、Gは水素原子又はハロゲンである。

【0035】

反応[B]の第1工程で用いるリチオ化剤としては、アルキルリチウム、フェニルリチウム、リチウムアミドなどが挙げられる。

【0036】

反応[B]の第1工程は、通常、溶媒及び不活性ガスの存在下で行う。

【0037】

反応[B]の第1工程で使用する溶媒は、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えばジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、ジメトキシエタンのようなエーテル類；ペンタン、ヘキサンのような環状又は非環状脂肪族炭化水素類；ベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

20

【0038】

反応[B]の第1工程で使用する不活性ガスは、例えば窒素、ヘリウム、アルゴンなどから適宜選択する。

【0039】

反応[B]の第1工程の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常 $-120 \sim +50$ ℃、望ましくは $-80 \sim +30$ ℃であり、反応時間は通常0.5～24時間、望ましくは1～16時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなどして個別に決定することができる。

30

【0040】

反応[B]の第2工程は、通常第1工程に引き続いて行い、その際第1工程で使用した溶媒又は不活性ガスをそのまま使用することができるが、場合によっては、前記第1工程で挙げた溶媒又は不活性ガスから適宜選択し、追加してもよい。

【0041】

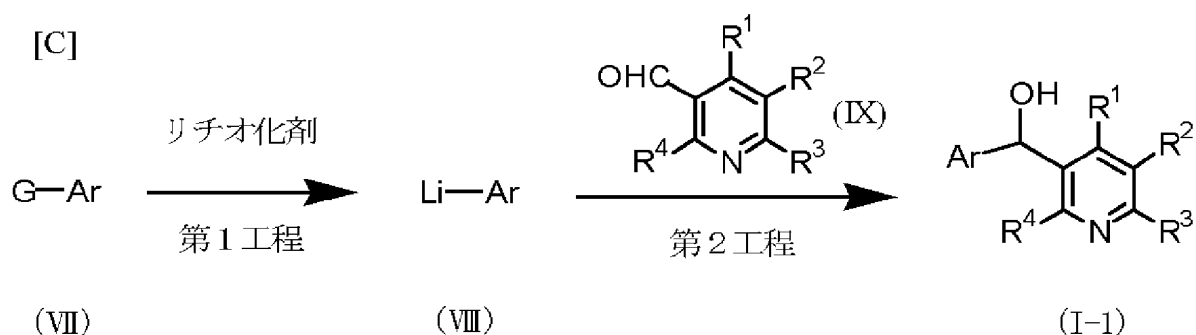
反応[B]の第2工程の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常 $-120 \sim +50$ ℃、望ましくは $-80 \sim +30$ ℃であり、反応時間は通常0.5～24時間、望ましくは1～16時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなどして個別に決定することができる。

40

【0042】

また、前述の式(I-1)で表される化合物は、下記反応[C]に従って(1)式(VII)で表される化合物とリチオ化剤とを反応させて式(VIII)で表される化合物を得る第1工程及び(2)式(VIII)で表される化合物と式(IX)で表される化合物とを反応させて式(I-1)を得る第2工程によっても、製造することができる。

【化25】



10

【0043】

反応[C]中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及びGは前述の通りである。

【0044】

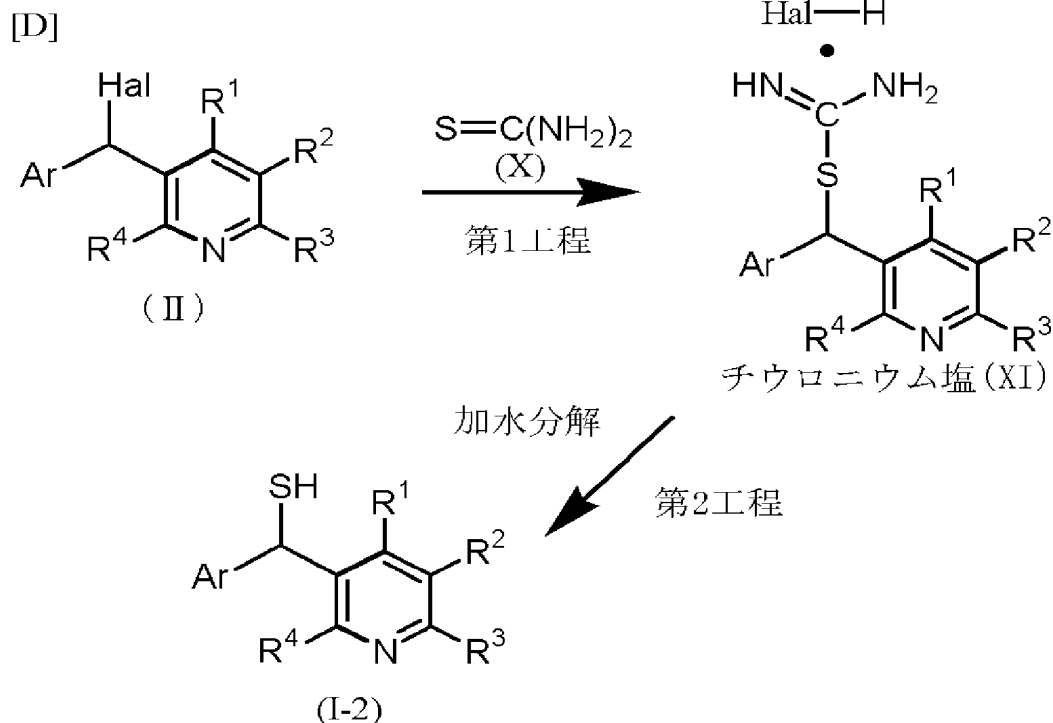
反応[C]の第1工程は前記反応[B]の第1工程に準じて、反応[C]の第2工程は前記反応[B]の第2工程に準じて各々行う。

【0045】

前述の式(I)で表される化合物のうち式(I-2)で表される化合物は、下記反応[D]に従って、(1)式(XI)で表される化合物と式(X)で表される化合物とを反応させて式(XI)で表されるチウロニウム塩を得る第1工程及び(2)式(XI)で表されるチウロニウム塩を加水分解して式(I-2)で表される化合物を得る第2工程により、製造することができる。

20

【化26】



30

40

【0046】

反応[D]中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及びHalは前述の通りである。

【0047】

反応[D]の第1工程は、通常、溶媒の存在下で行う。

【0048】

反応[D]の第1工程で使用する溶媒は、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼンのような芳香族炭化水素類

50

；ヘキサン、イソパラフィン、シクロヘキサン、塩化メチル、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタンのような脂肪族炭化水素類；ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテルのようなエーテル類；酢酸メチル、酢酸エチルのようなエステル類；メタノール、エタノール、フロパノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類；水などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0049】

反応〔D〕の第1工程の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常0～120℃、望ましくは20～100℃であり、反応時間は通常0.05～24時間、望ましくは0.1～12時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行なうなどして個別に決定することができる。

10

【0050】

反応〔D〕の第2工程は、通常、塩基及び溶媒の存在下で行う。

【0051】

反応〔D〕の第2工程で使用する塩基は、例えば水酸化カリウム、水酸化ナトリウムのような金属水酸化物；炭酸カリウム、炭酸ナトリウムのような炭酸塩などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0052】

反応〔D〕の第2工程で使用する溶媒は、前記反応〔D〕の第1工程で例示したものから、1種又は2種以上を適宜選択する。

20

【0053】

反応〔D〕の第2工程は、必要に応じ、相間移動触媒の存在下で行う。

【0054】

反応〔D〕の第2工程で使用する相間移動触媒は、テトラエチルアンモニウムブロミド、テトラブチルアンモニウムブロミド、ベンジルトリエチルアンモニウムブロミド、ベンジルトリエチルアンモニウムクロリドなどから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0055】

反応〔D〕の第2工程は、第1工程に引き続いて、同一反応器内で塩基及び必要に応じて相間移動触媒を加え、連続的に行うことができ、その際第1工程で使用した溶媒をそのまま使用することができるが、場合によっては、前記第1工程で挙げた溶媒から適宜選択し、追加してもよい。また、反応〔D〕の第2工程で得られる式(I-2)の化合物は、反応系中では塩として存在する場合があるが、その際は通常の中和处理を行うことができる。

30

【0056】

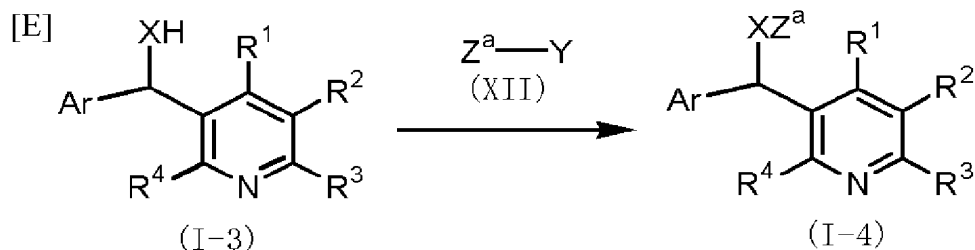
反応〔D〕の第2工程の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常-5～+180℃、望ましくは5～180℃であり、反応時間は通常0.1～24時間、望ましくは0.5～12時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行なうなどして個別に決定することができる。

【0057】

前述の式(I)で表される化合物のうち式(I-4)で表される化合物は、下記反応〔E〕に従って、前述の式(I)で表される化合物に含まれる式(I-3)で表される化合物と式(XII)で表される化合物とを反応させることにより、製造することができる。

40

【化27】



【0058】

反応[E]中、Ar、X、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は前述の通りであり、 Z^a は置換されてもよいアルキル、 $-\text{CH}_2\text{CN}$ 、置換されてもよいアルケニル、置換されてもよいアルキニル、置換されてもよいシクロアルキル、 $-\text{COR}^7$ 、 $-\text{CSR}^7$ 、 $-\text{SOR}^7$ 、 $-\text{SO}_2\text{R}^7$ 、 R^8 で置換されてもよいフェニル又は R^8 で置換されてもよいピリジル(R^7 及び R^8 は前述の通り)であり、Yは塩素原子、臭素原子のようなハロゲン或はポートルエンシルホニルオキシ、メタンスルホニルオキシのような有機スルホン酸残基である。

10

【0059】

反応[E]は、通常、塩基及び溶媒の存在下で行う。塩基及び溶媒は、前記反応[A]で各々例示したものから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0060】

反応[E]は、必要に応じ不活性ガスの存在下で行う。

20

【0061】

反応[E]で使用する不活性ガスは、例えば窒素、ヘリウム、アルゴンなどから適宜選択する。

【0062】

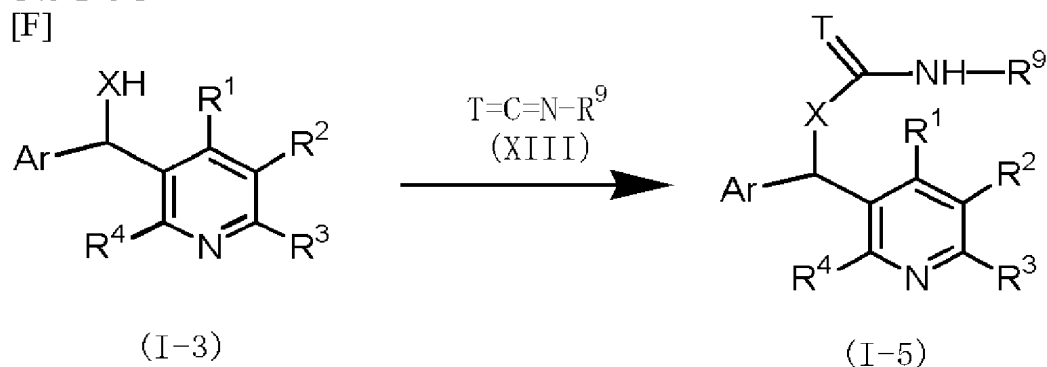
反応[E]の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常 $-80 \sim +100$ ℃、望ましくは $0 \sim 50$ ℃であり、反応時間は通常0.1～48時間、望ましくは1～24時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなどして個別に決定することができる。

30

【0063】

前述の式(I)で表される化合物のうち式(I-5)で表される化合物は、下記反応[F]に従って前述の式(I-8)で表される化合物と式(XIII)で表される化合物とを反応させることにより、製造することができる。

【化28】



40

【0064】

反応[F]中、Ar、X、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及び R^9 は前述の通りであり、Tは酸素原子又は硫黄原子である。

【0065】

反応[F]は、必要に応じ溶媒及び触媒の存在下で行う。

50

【0066】

反応〔F〕で使用する溶媒は、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼンのような芳香族炭化水素類；ヘキサン、イソパラフィン、シクロヘキサン、塩化メチル、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタンのような脂肪族炭化水素類；ジオキサン、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテルのようなエーテル類；酢酸メチル、酢酸エチルのようなエステル類などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0067】

反応〔F〕で使用する触媒は、例えばピリジン、4-ジメチルアミノピリジンのようなピリジン類；トリメチルアミン、トリエチルアミンのようなアミン類；酢酸、トリフルオロ酢酸のような有機酸類；ジブチルスズラウレートのようなスズ化合物類；塩化銅（I）のような遷移金属塩類などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

10

【0068】

反応〔F〕の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常 $-20 \sim +150$ ℃、望ましくは $-5 \sim +70$ ℃であり、反応時間は通常0.5～72時間、望ましくは1～24時間である。但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなどして個別に決定することができる。

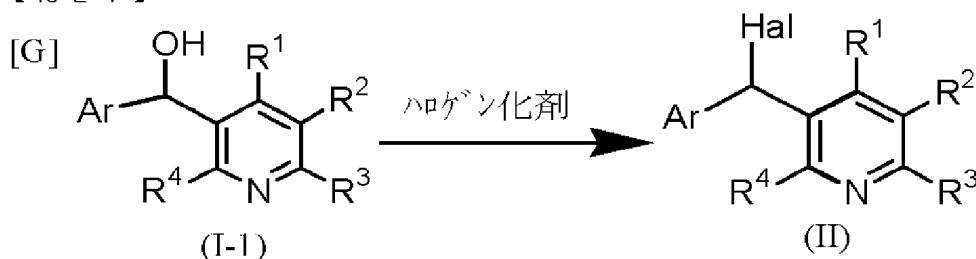
【0069】

前記反応〔A〕又は〔D〕で使用する式（I-I）で表される化合物は、新規化合物を含む。この化合物は、以下の反応〔G〕に従って、前述の式（I-1）で表される化合物とハロゲン化剤とを反応させることにより、製造することができる。

20

【0070】

【化29】



30

【0071】

反応〔G〕中、Ar、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及び Hal は前述の通りである。

【0072】

反応〔G〕で使用するハロゲン化剤としては、例えば塩化チオニル、オキシ塩化リン、5塩化リン、臭化チオニル、オキシ臭化リン、5臭化リンなどが挙げられる。

【0073】

反応〔G〕は、必要に応じ溶媒の存在下で行うが、一般には、溶媒を使用することが望ましい。

40

【0074】

反応〔G〕で使用する溶媒は、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えばベンゼン、トルエンのような芳香族炭化水素類；塩化メチレン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタンのようなハロゲン化アルキル類などから、1種又は2種以上を適宜選択する。

【0075】

反応〔G〕の反応温度及び反応時間は、化合物の種類、反応条件の相違などによって異なり、一概に規定できないが、反応温度は通常 $-40 \sim +150$ ℃、望ましくは $0 \sim 90$ ℃であり、反応時間は通常1～24時間、望ましくは2～6時間である。

但し、最適な反応温度及び反応時間は、各種反応条件を勘案し、適宜予備試験を行うなど

50

して個別に決定することができる。

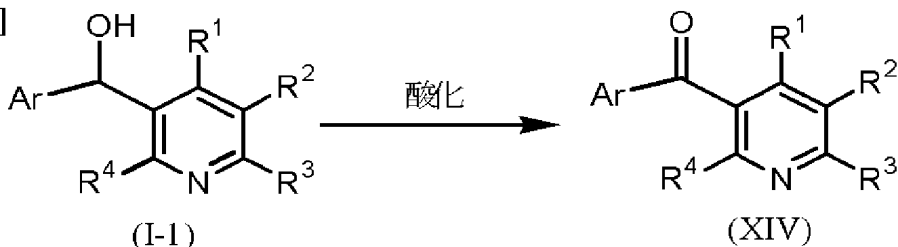
【0076】

本発明化合物には、前述した通り光学異性体が含まれるが、任意の異性体を製造するには、例えば以下のような方法に従って製造することができる。まず、下記反応〔H〕のように、式（I-1）で表される化合物を常法に従い酸化して、式（XIV）で表される化合物を製造する。当該酸化の方法としては、例えば二酸化マンガ、クロム酸のような金属酸化剤を用いる方法、スワン酸化法などが挙げられる。

【0077】

【化80】

〔H〕



10

【0078】

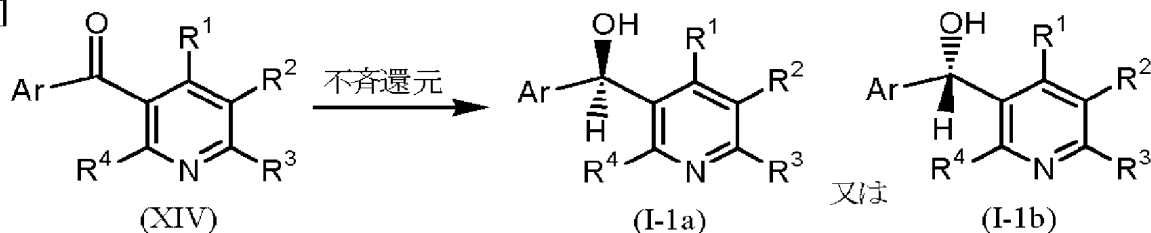
次いで下記反応〔I〕のように、式（XIV）で表される化合物を常法に従い不斉還元して、式（I-1a）又は（I-1b）で表される式（I）の光学異性体化合物を製造することができる。当該不斉還元の方法としては、例えば *Angew. Chem. Int. Ed.* 1998年、37巻、1986～2012頁や、第4版実験化学講座26、有機合成 *VIII*、23～68頁に記載された方法などが挙げられる。

20

【0079】

【化81】

〔I〕



30

【0080】

その後、式（I-1a）又は（I-1b）で表される化合物を用い、前記反応〔E〕又は〔F〕に準じて任意の式（I）の光学異性体化合物を製造することができる。

【0081】

本発明化合物は、除草剤の有効成分として使用した場合に優れた除草効果を示す。その適用範囲は、水田、畑地、果樹園、桑園などの農耕地、山林、農道、グラウンド、工場敷地などの非農耕地と多岐にわたり、適用方法も土壌処理、茎葉処理、湛水処理等を適宜選択できる。

40

【0082】

本発明化合物は、例えばイヌビエ、メシバ、エノコログサ、アキノエノコログサ、オビシバ、カラスムギ、セイパンモロコシ、シバムギ、ビロードキビ、ハラグラス、アゼガヤ、イトアゼガヤ、スズメノカタビラ、スズメノテッポウなどのイネ科雑草、コゴメガヤツリ、ハマスゲ、キハマスゲ、ホタルイ、ミズガヤツリ、タマガヤツリ、マツバイ、クログワイなどのカヤツリグサ科雑草、ウリカワ、オモダカ、ヘラオモダカなどのオモダカ科雑草、コナギ、ミズアオイなどのミズアオイ科雑草、アゼナ、アブノメなどのゴマノハグサ科雑草、キカシグサ、ヒメミソハギなどのミソハギ科雑草の他、イチビ、マルバアサガオ、シロサ、アメリカキンゴジカ、スベリヒユ、アオビユ、アオゲイトウ、エビスグサ、イ

50

又ホウズキ、サナエタデ、ハコベ、オナモミ、タネツケバナ、ホトケノサ、ブタクサ、ヤエムグラ、セイヨウビルガオ、チョウセンアサガオ、エノキツネアサミ、エノキグサなどの広葉雑草などの有害雑草を防除することができる為、有用作物、例えばトウモロコシ、ダイズ、ワタ、コムギ、イネ、オオムギ、エンバク、ソルガム、アブラナ、ヒマワリ、テンサイ、サトウキビ、芝、ピーナッツ、アマ、タバコ、コーヒーなどの栽培において選択的に有害雑草を防除する場合或は非選択的に有害雑草を防除する場合において有効に使用される。特に本発明化合物は、トウモロコシ、ダイズ、ワタ、コムギ、イネ、アブラナ、ヒマワリ、テンサイ、サトウキビ、芝、ピーナッツ、アマ、タバコ、コーヒーなどの栽培、その中でもトウモロコシ、ダイズ、コムギ、イネなどの栽培において選択的に有害雑草を防除する場合において有効に使用される。

10

【0083】

本発明化合物は通常各種農業上の補助剤と混合して粉剤、粒剤、粒水和剤、水和剤、水性懸濁剤、油性懸濁剤、水溶剤、乳剤、錠剤、カプセル剤などの形態に製剤し、除草剤として使用されるが、本発明の目的に適合するがぎり、通常の当該分野で用いられているあらゆる製剤形態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、珪藻土、消石灰、炭酸カルシウム、タルク、ホワイトカーボン、カオリン、ペントナイト、カオリナイト及びセリサイトの混合物、クレー、炭酸ナトリウム、重曹、硝、ゼオライト、澱粉などの固型担体；水、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、ジオキサン、アセトン、イソホロン、メチルイソブチルケトン、クロロベンゼン、シクロヘキサン、ジメチルスルホキシド、ジメチルホルムアミド、N-メチル-2-ピロリドン、アルコールなどの溶剤；脂肪酸塩、安息香酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ポリカルボン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキル硫酸塩、アルキルアリール硫酸塩、アルキルジグリコールエーテル硫酸塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アリールスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルジフェニールエーテルジスルホン酸塩、ポリスチレンスルホン酸塩、アルキルリン酸エステル塩、アルキルアリールリン酸塩、スチリルアリールリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールリン酸エステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物の塩のような陰イオン系の界面活性剤や展着剤；ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、脂肪酸ポリグリセライド、脂肪酸アルコールポリグリコールエーテル、アセチレングリコール、アセチレンアルコール、オキシアルキレンブロッックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルアリールエーテル、ポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシプロピレン脂肪酸エステルのような非イオン系の界面活性剤や展着剤；オリーブ油、カボック油、ひまし油、シュロ油、椿油、ヤシ油、ごま油、トウモロコシ油、米ぬか油、落花生油、綿実油、大豆油、菜種油、亞麻仁油、きり油、液状パラフィンなどの植物油や鉱物油などが挙げられる。これら補助剤は本発明の目的から逸脱しないがぎり、当該分野で知られたものの中から選んで用いることができる。また、増量剤、増粘剤、沈降防止剤、凍結防止剤、分散安定剤、薬害軽減剤、防剤など通常使用される各種補助剤も使用することができる。本発明化合物と各種補助剤との配合割合は0.1：99.9～95：5、望ましくは0.2：99.8～85：15である。

20

30

40

【0084】

本発明化合物を含有する除草剤の施用量は、気象条件、土壌条件、製剤形態、対象雑草の種類、施用時期などの相違により一概に規定できないが、一般に1ヘクタール当り本発明化合物が0.5～5000g、望ましくは1～1000g、更に望ましくは10～500gとなるように施用する。本発明には、このような除草剤の施用による有害雑草の

50

防除方法も含まれる。

【0085】

また、本発明化合物を含有する除草剤は、他の農薬、肥料、葉害軽減剤などと混用或は併用することができ、この場合に一層優れた効果、作用性を示すことがある。他の農薬としては、除草剤、殺菌剤、抗生物質、植物ホルモン、殺虫剤などが挙げられる。特に、本発明化合物と他の除草剤の有効成分化合物の1種又は2種以上とを混用或は併用した混合除草性組成物は、適用草種の範囲、薬剤処理の時期、除草活性等を好ましい方向へ改良することが可能である。尚、本発明化合物と他の除草剤の有効成分化合物は各々別々に製剤したものを散布時に混合して使用しても、両者を一緒に製剤して使用してもよい。本発明には、前記した混合除草性組成物も含まれる。

10

【0086】

本発明化合物と他の除草剤の有効成分化合物との混合比は、気象条件、土壌条件、薬剤の製剤形態、施用時期、施用方法などの相違により一概に規定できないが、本発明化合物1重量部に対し、他の除草剤は有効成分化合物を1種あたり0.001～10000重量部、望ましくは0.01～1000重量部配合する。また、施用適量は1ヘクタール当りの総有効成分化合物量として0.1～10000g、望ましくは0.2～5000g、更に望ましくは10～8000gである。本発明には、このような混合除草性組成物の施用による有害雑草の防除方法も含まれる。

【0087】

他の除草剤の有効成分化合物としては、下記するもの（一般名：一部ISO申請中を含む）が例示できるが、特に記載がない場合であってもこれら化合物に塩、アルキルエステル等が存在する場合は、当然それらも含まれる。

20

【0088】

(1) 2,4-D、2,4-DP、MCPA、MCPB、MCPP、ナフロアニリド (naphroanilide) のようなフェノキシ系、2,3,6-TBA、ジカンバ (dicamba)、ジクロベニル (dichlobenil)、ピクロラム (picloram)、トリクロピル (trichlopyr)、クロピラリド (clopyralid) のような芳香族カルボン酸系、その他ベナゾリン (benazolin)、キンクロラック (quinclorac)、キンメラック (quinmerac)、ダイフルフェンゾピル (diflufenpyr)、チアゾピル (thiazopyr) などのように植物のホルモン作用を乱すことで除草効力を示すとされているもの。

30

【0089】

(2) クロロトルロン (chlorotoluron)、ジウロン (diuron)、フルオメツロン (fluometuron)、リニュロン (linuron)、イソプロチュロン (isoproturon)、メトベンズロン (metobenzuron)、テブチウロン (tebuthiuron) のような尿素系、シマジン (simazine)、アトラジン (atrazine)、アトラトン (atratone)、シメトリン (simetryn)、プロメトリン (prometryn)、ジメタメトリン (dimethametryn)、ヘキサジノン (hexazinone)、メトリブジン (metribuzin)、テルブチラジン (terbutylazine)、シアナジン (cyanazine)、アメトリン (ametryn)、シブトリン (cybutryne)、トリアジフラム (triaziflam)、プロパジン (propazine) のようなトリアジン系、ブロマシル (bromacil)、レナシル (lenacil)、ターバシル (terbacil)、のようなウラシル系、プロパニル (propamil)、シフロミッド (cyflomid) のようなアニリド系、スエップ (sweep)、デスメディファム (desmedipham)、フェンメディファム (phenmedipham) のようなカーバメート系、ブロモキシニル (bromoxynil)、ブロモキシニル・オクタノエート (bromoxynil-octanoate)、アイオキシニル (ioxynil) のようなヒドロキシベンゾニトリル系、その他ピリデート (pyridate)、ペンタゾン (bentazon)、アミカルバゾン (amicarbazon)

40

50

e) などのように植物の光合成を阻害することゝ除草効力を示すとされているもの。

【0090】

(3) それ自身が植物体中でフリーラジカルとなり、活性酸素を生成させて速効的な除草効力を示すとされているパラコート (Paraquat)、ジクワット (diquat) のような4級アンモニウム塩系。

【0091】

(4) ニトロフェン (nitrofen)、クロメトキシフェン (chloromethoxyfen)、ビフェノックス (bifenox)、アシフルオルフェンナトリウム塩 (acifluorfen-sodium)、ホメサフェン (fomesafen)、オキシフルオルフェン (oxyfluorfen)、ラクトフェン (lactofen)、エトキシフェンエチル (ethoxyfen-ethyl) のようなジフェニルエーテル系、クロルフラリム (chlorphthalim)、フルミオキサジン (flumioxazin)、フルミクロラックペンチル (flumiclorac-pentyl)、フルチアセツトメチル (fluthiacet-methyl) のような環状イミド系、その他オキサジアールギル (oxadiazargyl)、オキサジアゾン (oxadiazon)、スルフエントラゾン (sulfentrazone)、カーフェントラゾンエチル (carfentrazone-ethyl)、チジアジミン (thidiazimin)、ペントキサゾン (Pentoxazone)、アザフェニジン (azafenidin)、ピラフルフェンエチル (pyraflufen-ethyl)、ベンズフェンジゾン (benzfendizone)、ブタフェナシル (butfenacil)、メトベンズロン (metobenzuron)、シニドンエチル (cinidon-ethyl)、フルボキサム (flupoxam)、フルアゾレート (fluaзолate)、フロフルアゾール (profloazol)、ピラクロニル (pyrachlonil) などのように植物のクロロフィル生合成を阻害し、光増感過酸化物質を植物体中に異常蓄積させることゝ除草効力を示すとされているもの。

【0092】

(5) ノルフルラゾン (norflurazon)、メトフルラゾン (metflurazon) のようなピリダジノン系、ピラゾレート (pyrazolate)、ピラゾキシフェン (pyrazoxyfen)、ベンゾフェナップ (benzofenap) のようなピラゾール系、その他アミトロール (amitrol)、フルリドン (fluridone)、フルルタモン (flurtamone)、ジフルフェニカン (diflufenican)、メトキシフェノン (methoxyphenone)、クロマゾン (clomazone)、スルコトリオン (sulcotrione)、メソトリオン (mesotrione)、イソキサフルトール (isoxaflutole)、ジフェンゾクワット (difenzquat)、イソキサクロロトール (isoxachlorotole)、ベンゾビシクロン (benzobicyclone)、ピコリノフェン (picolinofen)、ビフルブタミド (beflubutamid) などのようにカロチノイドなどの植物の色素生合成を阻害し、白化作用を特徴とする除草効力を示すとされているもの。

【0093】

(6) ジクロホッフメチル (diclofop-methyl)、フラムフロッフエムメチル (flamprop-m-methyl)、トリフェノッフナトリウム塩 (triflufenop-sodium)、フルアジホッフブチル (fluaзifop-butyl)、ハロキシホッフメチル (haloxyfop-methyl)、キサロホッフエチル (quizalofop-ethyl)、シハロホッフブチル (cyhalofop-butyl)、フェノキサプロッフエチル (fenoxaprop-ethyl) のようなアリールオキシフェノキシアロビオン酸系、アロキシジムナトリウム塩 (alioxydim-sodium)、クレソジム (clethodim)、セトキシジム (sethoxydim)、トラルコキシジム (tralkoxydim)、ブトロキシジム (butoxydim)、テフラロキシジム (teflaloxymdim)、カロキシジム (

10

20

30

40

50

caloxymdim)、クレフォキシジム(clefoxymdim)のようなシクロヘキサジオン系などのようにイネ科植物に特異的に除草効力が強く認められるもの。

【0094】

(7) クロリムロンエチル(chlorimuron-ethyl)、スルホメツロンメチル(sulfometuron-methyl)、プリミスルフロンメチル(Primisulfuron-methyl)、ベンスルフロンメチル(bensulfuron-methyl)、クロルスルフロン(chlorosulfuron)、メトスルフロンメチル(metsulfuron-methyl)、シノスルフロン(cinosulfuron)、ピラザスルフロンエチル(Pyrazosulfuron-ethyl)、アジムスルフロン(adimsulfuron)、フラザスルフロン(flazasulfuron)、リムスルフロン(rimsulfuron)、ニコスルフロン(nicosulfuron)、イマザスルフロン(imazosulfuron)、シクロスルフアムロン(cyclosulfamuron)、プロスルフロン(Prosulfuron)、フルピルスルフロン(flupyralsulfuron)、トリスルフロンメチル(trisulfuron-methyl)、ハロスルフロンメチル(halosulfuron-methyl)、チフェンスルフロンメチル(thifensulfuron-methyl)、エトキシスルフロン(ethoxysulfuron)、オキサスルフロン(oxasulfuron)、エタメトスルフロン(ethametsulfuron)、フルピルスルフロン(flupyralsulfuron)、イオドスルフロン(iodosulfuron)、スルフォスルフロン(sulfosulfuron)、トリトスルフロン(tritosulfuron)、フォーラムスルフロン(foramsulfuron)、トリフルオキシスルフロン(trifloxysulfuron)のようなスルホニルウレア系、フルメツラム(flumetsulam)、メトスラム(metosulam)、ジクロスラム(diclosulam)、クロランスラムメチル(chloransulam-methyl)、フロラスラム(florasulam)、メトスルフアム(metosulfam)、ペノクスラム(penoxsulam)のようなトリアゾロピリミジンスルホンアミド系、イマザピル(imaza-pyr)、イマゼタピル(imaze-tha-pyr)、イマザキン(imazaquin)、イマザモックス(imazamox)、イマザメス(imazame-th)、イマザメタベンズ(imazame-tha-benz)、イマザピック(imaza-pic)のようなイミダゾリノン系、ピリチオバックナトリウム塩(Pyrit-hiobac-sodium)、ビスピリバックナトリウム塩(bispyrithiobac-sodium)、ピリミノバックメチル(Pyriminobac-methyl)、ピリベンゾキシム(Pyribenzoxim)、ピリフタリド(Pyrit-fthalid)のようなピリミジニルサリチル酸系、フルカーバゾン(flucarbazon)、プロカーバゾンソディウム(Procarbazon-sodium)のようなスルホニルアミノカルボニルトリアゾリノン系、その他グリホサートアンモニウム塩(Glyphosate-ammonium)、グリホサートイソプロピルアミン塩(Glyphosate-isopropylamine)、グルホシネートアンモニウム塩(Glufosinate-ammonium)、ビアラホス(bialaphos)などのように植物のアミノ酸生合成を阻害することゝ除草効力を示すとされているもの。

【0095】

(8) トリフルラリン(trifluralin)、オリザリン(oryzalin)、ニトラリン(nitralin)、ペンディメタリン(Pendimethalin)、エタルフルラリン(ethalfuralin)のようなジニトロアニリン系、アミプロホスメチル(amiprofos-methyl)、ブタミホス(butamifos)、アニロホス(anilofos)、ピペロホス(Piperophos)のような有機リン系、クロルプロファミ(chlorpropham)、バーバン(barban)のようなフェニルカーバメート系、ダイムロン(daimuron)、クミルロン(cumyluron)、ブロモブチド(bromobutide)のようなクミルアミン系、

10

20

30

40

50

その他アシュラム (asulam)、ジチオビル (dithiopyr)、チアゾビル (thiazopyr) などのように植物の細胞有糸分裂を阻害することゝ除草効力を示すとされているもの。

【0096】

(9) EPTC、ブチレート (butylate)、モリネート (molinate)、ジメピペレート (dimethylate)、フルアゾレート (fluaazolate)、エスプロカルブ (esprocarb)、チオベンカルブ (thiobencarb)、ピリブチカルブ (pyributicarb)、トリアレート (triallate) のようなチオカーバメート系、アラクロール (alachlor)、ブタクロール (butachlor)、プレチラクロール (pretilachlor)、メトラクロール (metolachlor)、S-メトラクロール (S-metolachlor)、テニルクロール (tenchlor)、ペトキサミド (petoxamid)、ジメテナミド (dimethenamid)、アセトクロール (acetochlor)、プロバクロール (propachlor) のようなクロロアセトアミド系、その他エトベンザニド (etobenzanid)、メフェナセツ (mefenacet)、フルフェナセツ (flufenacet)、トリディファン (tridiflone)、カフェンストロール (cafenstrole)、フェントラザミド (fentrazamid)、オキサジクロメフォン (oxaziclonomefene)、インダノファン (indanofan) などのように植物のタンパク質生合成あるいは脂質生合成を阻害することゝ除草効力を示すとされているもの。

10

20

【0097】

(10) Xanthomonas campestris, Epilobium cicutarium, Exserohilum monoseras, Drechslera monoceras などのように植物に寄生することゝ除草効力を示すとされているもの。

【0098】

【0099】

また本発明化合物は後記試験例に見られるとおり、トウモロコシ、ダイズ、コムギ、イネなどの作物に対し安全性を有し、且つ、雑草を良好に防除できる選択性を示すものを含むが、本発明化合物を前記作物栽培において使用する際、前記他の除草剤の有効成分化合物中、例えば次のごとき化合物の1種または2種以上と混用或は併用すれば相乗効果が得られることがある。

30

【0100】

イネの栽培：2, 4-D、MCPA、MC PB、トリクロピル、ナフロアニリド、ジクロベニル、キンクロラック、シメトリン、フロメトリン、ジメタメトリン、フロベニル、スエップ、ペンタゾン、ニトロフェン、クロメトキシフェン、ピフェノックス、アシフルオルフェンナトリウム塩、オキサジアルギル、オキサジアゾン、スルフェントラゾン、カーフェントラゾンエチル、ペントキサゾン、ピラゾレート、ピラゾキシフェン、ペンゾフェナップ、メトキシフェノン、シハロホップブチル、フェノキサプロップエチル、ペンスルフロメチル、シノスルフロン、ピラゾスルフロンエチル、アジムスルフロン、イマゾスルフロン、シクロスルファミロン、エトキシスルフロン、ペノクススラム、ビスピリバクナトリウム塩、ピリミノバクメチル、ペンディメタリン、アニロホス、ビベロホス、ダイムロン、クミルロン、プロモブチド、ジチオビル、モリネート、ジメピペレート、エスプロカルブ、チオベンカルブ、ピリブチカルブ、テニルクロール、プレチラクロール、ブタクロール、エトベンザニド、メフェナセツ、フルフェナセツ、カフェンストロール、フェントラザミド、オキサジクロメフォン、インダノファン、ペンゾビシクロン、ピリベンゾキシム、トリアジフラム、クレフォキシジム、ピラクロニル、ピリフタリド

40

【0101】

ダイズの栽培：2, 4-D、リニユロン、メトリブジン、シアナジン、ペンタゾン、パラコート、アシフルオルフェンナトリウム塩、ホメサフェン、ラクトフェン、エトキシフェ

50

ンエチル、フルミクロラックベンチル、フルミオキサジン、フルチアセツトメチル、スルフェントラゾン、ノルフルラゾン、クロマゾン、フルアジホッフアチル、キサロホッフエチル、フェノキサプロッフエチル、ハロキシホッフメチル、クレゾジウム、セトキシジウム、ブトロキシジウム、テアラロキシジウム、クロリムロンエチル、チフェンスルフロンメチル、オキサスルフロン、フルメツラム、クロランスラムメチル、ジクロスラム、イマザビル、イマゼタビル、イマザキン、イマザモックス、イマザビック、トリフルラリン、ペンディメタリン、エタルフルラリン、アラクロール、ペトキサマイド、メトラクロール、S-メトラクロール、アセトクロール、ジメテナミド、フルフェナセツト

【0102】

トウモロコシの栽培：2, 4-D、MCPA、ジカンバ、クロビラリド、ベナゾリン、ダイフルフェンゾビル、ジウロン、リニュロン、メトペンズロン、シマジン、アトラジン、アトラトン、メトリブジン、テルブチラジン、シアナジン、アメトリン、シフロミッド、ブロモキシニル、ブロモキシニル・オクタノエート、ビリデート、ベントゾン、パラコート、オキシフルオルフェン、フルミクロラックベンチル、フルチアセツトメチル、フルリドン、スルコトリオン、メソトリオン、イソキサフルトール、カーフェントラゾンエチル、フリミスルフロンメチル、リムスルフロン、ニコスルフロン、フロスルフロン、ハロスルフロンメチル、チフェンスルフロンメチル、フルメツラム、メトスラム、イマゼタビル、グリホサートアンモニウム塩、グリホサートイソプロピルアミン塩、グルホシネートアンモニウム塩、トリフルラリン、ペンディメタリン、EPTC、アチレート、アラクロール、ペトキサマイド、メトラクロール、S-メトラクロール、アセトクロール、フロバクロール、ジメテナミド、トリディファン、フロラスラム、メトペンズロン、メトスルファン、オキサスルフロン、テアラロキシジウム

【0103】

コムギの栽培：MCPB、ジクロベニル、キンメラック、クロロトルロン、リニュロン、イソプロチュロン、フロメトリン、ブロモキシニル、ブロモキシニル・オクタノエート、ビリデート、ビフェノックス、カーフェントラゾンエチル、チジアジミン、ビラフルフェンエチル、フルルタモン、ジフルフェニカン、スルコトリオン、ジクロホッフメチル、フラムフロッフエムエチル、トラルコキシジウム、クロルスルフロン、メトスルフロンメチル、フロスルフロン、ハロスルフロンメチル、フルメツラム、メトスラム、ペンディメタリン、バーバン、イマザメタベンズ、シニドンエチル、エトキシフェンエチル、フロラスラム、フルアサレート、フルボキサム、イオドスルフロン、メトスルファミン、ビリベンゾキシム、スルフォスルフロン、トラルコキシジウム、フルカルバゾンソディウム、ビコリノフェン、シクロスルファミン、エトキシスルフロン、イマザモックス

【0104】

【実施例】

次に本発明の実施例を記載するが、本発明はこれらに限定されるものではない。まず本発明化合物の合成例を記載する。

【0105】

合成例1：1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール(後記化合物No. 6)の合成

(1) ジイソプロピルアミン13.2gと、テトラヒドロフラン240mlとの混合溶液を-20℃に冷却し、窒素雰囲気下でノルマルブチリチウムのヘキサン溶液80ml(濃度1.59mol/l)を徐々に滴下した後、同温度で30分間反応させた。この溶液を-50℃に冷却し、2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン22.0gと、テトラヒドロフラン30mlとの混合溶液を、窒素雰囲気下で滴下した後、同温度で1時間反応させた。得られた溶液を-78℃まで冷却し、1-ナフタレンカルバルデヒド18.8gと、テトラヒドロフラン30mlとの混合溶液を徐々に滴下した後、14時間反応させ、液温を5℃付近まで戻した。反応終了後、減圧下溶媒を留去し、酢酸エチル200mlおよび5%塩化アンモニウム水溶液100mlを室温で加え、した後、分液した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリ

10

20

30

40

50

ウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、粗製の1-(ナフタレン-1-イル)-1-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノールを得た。

【0106】

(2) 前記工程(1)で得た粗製の1-(ナフタレン-1-イル)-1-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノールを無水メタノール300 mlに溶解させ、トリエチルアミン14.5 gを加えた後、5%パラジウム-炭素3.0 gを0℃で徐々に添加した。反応容器を減圧した後、水素ガスを導入しながら室温で8日間して接触還元反応を行った。反応終了後、セライト過し、メタノール洗浄して得た液を減圧下濃縮し、酢酸エチル200 mlで抽出し、水洗した後、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液:ノルマルヘキサン/酢酸エチル=3/1)で精製して、融点123~125℃の目的物31.5 gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

10

¹H-NMR [400MHz, CDCl₃, TMS, δ (ppm)]

8.05 (d, 1H; J=4Hz), 6.96 (d, 1H; J=4Hz), 7.43-7.5 (m, 4H), 7.55 (d, 1H; J=5Hz), 7.8-7.9 (m, 3H), 8.65 (d, 1H; J=6Hz), 8.71 (s, 1H)

【0107】

合成例2:1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタンチオール(後記化合物No.8)の合成

20

(1) 1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチルクロリド1.45 gと、99%エタノール10 mlとの混合溶液に、40℃でチオウレア0.35 gを投入し、2時間加熱還流下で反応させた。反応終了後、放冷し、溶媒をエバポレーターで減圧下留去して、粗製のチウロニウム塩を得た。

【0108】

(2) 前記工程(1)で得た粗製のチウロニウム塩に、2N-苛性ソーダ水溶液3.5 mlを加え、約50℃で0.5時間反応させ、さらに酢酸エチル10 mlを加えた後、約1時間加熱還流下で反応させた。反応終了後、室温まで放冷し、酢酸エチル70 mlで抽出して水洗した。無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液:ノルマルヘキサン/酢酸エチル=4/1)で精製して、目的物0.2 gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

30

¹H-NMR [400MHz, CDCl₃, TMS, δ (ppm)]

2.52 (d, 1H; J=6Hz), 6.52 (d, 1H; J=6Hz), 7.3-7.5 (m, 5H), 7.79 (d, 1H; J=8Hz), 7.86 (d, 1H; J=7Hz), 8.07 (d, 1H; J=8Hz), 8.68 (d, 1H; J=6Hz), 9.12 (s, 1H)

【0109】

合成例3:1-(5-クロロ-1,3-ベンゾジオキソラン-4-イル)-1-(2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール(後記化合物No.16)の合成

40

ジイソプロピルアミン1.7 gと、テトラヒドロフラン40 mlとの混合溶液を-20℃に冷却し、窒素雰囲気下でノルマルブチルリチウムのヘキサン溶液10.1 ml(濃度1.59 mol/l)を徐々に滴下した後、同温度で80分間反応させた。この溶液を-50℃に冷却し、2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン2.8 gと、テトラヒドロフラン5 mlとの混合溶液を、窒素雰囲気下で滴下した後、同温度で1時間反応させた。得られた溶液を-78℃まで冷却し、5-クロロ-4-ホルミル-1,3-ベンゾジオキソラン2.8 gと、テトラヒドロフラン5 mlとの混合溶液を徐々に滴下した後、2時間反応させ、液温を-5℃付近まで戻した。反応終了後、酢酸エチル50 mlおよび5%塩化アンモニウム水溶液50 mlを0~10℃に加え、

50

した後、分液した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝2／1）で精製して、融点116～117℃の目的物8.8gを得た。

【0110】

合成例4：1-（5-クロロ-1,3-ベンゾジオキソラン-4-イル）-1-（4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）メタノール（後記化合物No.17）の合成
1-（5-クロロ-1,3-ベンゾジオキソラン-4-イル）-1-（2-クロロ-4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）メタノール1.88gを無水メタノール40mlに溶解させ、トリエチルアミン0.6gを加えた後、5%パラジウム-炭素0.2gを0℃下で徐々に添加した。反応容器を減圧した後、水素ガスを導入しながら室温で15時間して接触還元反応を行った。反応終了後、セライト過し、メタノール洗浄して得た液を減圧下濃縮し、酢酸エチル60mlで抽出し、水洗した後、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝3／2）で精製して、融点125～130℃の目的物1.4gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

10

¹H-NMR [400MHz, CDCl₃, TMS, δ (ppm)]

3.4 (s, 1H), 5.9-6.0 (m, 2H), 6.6 (s, 1H), 6.8-6.9 (m, 2H), 7.5 (d, 1H; J=6Hz), 8.7 (d, 1H; J=6Hz), 9.0 (s, 1H)

20

【0111】

合成例5：1-（ナフタレン-1-イル）-1-（4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）メタノールの光学異性体2種（後記化合物No.21及び22）の合成
（1）1-（ナフタレン-1-イル）-1-（4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）メタノール17gと、トルエン300mlとの混合溶液に、88%二酸化マンガンを50gを投入し、ティーンスタークトラップを用いて2時間加熱還流下で酸化反応を行った。反応終了後、放冷してセライト過し、液に無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝1／1）で精製して、融点98～103℃のナフタレン-1-イル（4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）ケトン13.8gを得た。

30

【0112】

（2-1）（1S, 2R）-（-）-cis-1-アミノ-2-インダノール0.15gと、無水テトラヒドロフラン10mlとの混合溶液を0℃に冷却し、窒素雰囲気下でトリメトキシボラン0.18gを徐々に添加し、5～10℃で1時間した。その後、同温度で90%ボランジメチルスルフィド錯体1.7gをシリンジを用いて徐々に滴下し、10分間反応させた後、液温を0℃に冷却し、前記工程（1）で得たナフタレン-1-イル（4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル）ケトン3.0gと、無水テトラヒドロフラン10mlとの混合溶液をシリンジを用いて徐々に滴下した。滴下終了後10～15℃で1時間反応させた。反応終了後、0℃まで冷却し、塩化メチレン100mlを加えてし、抽出した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下留去して、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝3／2）で精製して、一方の目的物（化合物No.21）を主成分とする反応混合物0.48g（光学純度91%e.e.）を得た。こゝで得た混合物0.48gのうち約10mgを、ノルマルヘキサン40μl及び2-プロパノール20μlの混合溶媒に溶解させ、ダイセル社製キラルカラム（CHIRALCEL OJ-H; 4.6mmφ×150mm）を用い、溶離液ノルマルヘキサン／2-プロパノール＝5／1（1ml/min.）で精製して、一方の目的物（カラム保持時間16.0分の化合物No.21）約7.5mgを得た。このものの比旋光度[α]_D²⁶は+55.4であり、融点は143～151℃であった。

40

50

【0113】

(2-2) 前記工程(2-1)と同様にして、(1S, 2R) - (+) - cis-1-アミノ-2-インダノールを用い、他方の目的物である化合物No. 21の対掌化合物(化合物No. 22)を主成分とする反応混合物0.50 g(光学純度88% e. e.)を得、前記工程(2-1)と同様に精製して、他方の目的物(カラム保持時間7.3分の化合物No. 22)5 mgを得た。このものの比旋光度 $[\alpha]_D^{26}$ は-41.0であり、融点は137~141℃であった。

【0114】

合成例6: 1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチル N, N-ジメチルカーバメート(後記化合物No. 56)の合成
1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール0.61 gと、テトラヒドロフラン15 mlとの混合溶液を0℃に冷却し、窒素雰囲気下で60%水素化ナトリウム0.16 gを徐々に添加し、5分間した。その後、同温度で塩化N, N-ジメチルカルバモイル0.2 gを徐々に滴下した後、1時間反応させ、液温を室温に戻しながら、さらに15時間反応させた。反応終了後、0℃まで冷却し、酢酸エチルおよび塩化アンモニウム水溶液を加えてした後、抽出した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液: ノルマルヘキサン/酢酸エチル=1/1)で精製して、融点133~134℃の目的物0.5 gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

10

20

$^1\text{H-NMR}$ [400 MHz, CDCl_3 , TMS, δ (ppm)]

2.91 (s, 3H), 2.93 (s, 3H), 7.07 (d, 1H; J=7 Hz), 7.38 (t, 1H; J=8 Hz), 7.48-7.55 (m, 2H), 7.59 (d, 1H; J=5 Hz), 7.84 (d, 1H; J=8 Hz), 7.88 (dd, 1H; J=8 & 2 Hz), 7.94 (s, 1H), 8.00 (d, 1H; J=8 Hz), 8.78 (d, 1H; J=5 Hz), 8.85 (s, 1H)

【0115】

合成例7: 1-(5-クロロ-1, 3-ベンゾジオキサラン-4-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチル N, N-ジメチルカーバメート(後記化合物No. 71)の合成
1-(5-クロロ-1, 3-ベンゾジオキサラン-4-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール0.7 gと、テトラヒドロフラン15 mlとの混合溶液を0℃に冷却し、窒素雰囲気下で60%水素化ナトリウム0.21 gを徐々に添加し、5分間した。その後、同温度で塩化N, N-ジメチルカルバモイル0.3 gを徐々に滴下した後、1時間反応させ、液温を室温に戻しながら、さらに12時間反応させた。反応終了後、0℃まで冷却し、酢酸エチルおよび塩化アンモニウム水溶液を加えてした後、抽出した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液: ノルマルヘキサン/酢酸エチル=1/1)で精製して、融点124~127℃の目的物0.31 gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

30

40

$^1\text{H-NMR}$ [400 MHz, CDCl_3 , TMS, δ (ppm)]

2.94 (s, 3H), 2.97 (s, 3H), 5.84 (d, 1H; J=1 Hz), 5.90 (d, 1H; J=1 Hz), 6.74 (d, 1H; J=8 Hz), 6.90 (d, 1H; J=8 Hz), 7.47 (s, 1H), 7.58 (d, 1H; J=5 Hz), 8.75 (d, 1H; J=5 Hz), 8.88 (s, 1H)

【0116】

合成例8: 1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチル N-エチルカーバメート(後記化合物No. 87)の合成
1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メ

50

タノール 0.61 g と、ジクロロメタン 10 ml との混合溶液を 10 °C に冷却し、エチルイソシアネート 0.29 g 及びジブチルスズジラウレート 2 滴を加えた後、室温で 15 時間反応させた。反応終了後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝1／1）で精製して、融点 125～128 °C の目的物 0.6 g を得た。このものの NMR スペクトルデータは以下の通りである。

$^1\text{H-NMR}$ [400 MHz, CDCl_3 , TMS, δ (ppm)]

1.11 (t, 3H; $J=7$ Hz), 3.2-3.3 (m, 2H), 4.84 (bs, 1H), 7.07 (d, 1H; $J=7$ Hz), 7.37 (t, 1H; $J=7$ Hz), 7.5-7.55 (m, 2H), 7.59 (d, 1H; $J=5$ Hz), 7.8-7.9 (m, 2H), 7.93 (s, 1H), 7.99 (d, 1H; $J=8$ Hz), 8.77 (d, 1H; $J=5$ Hz), 8.85 (s, 1H)

【0117】

合成例 9：1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチル 2-フルオロベンジルエーテル（後記化合物 No. 91）の合成

1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール 0.61 g と、無水ジメチルホルムアミド 8 ml の混合溶液を 0 °C に冷却し、窒素雰囲気下で 60 % 水素化ナトリウム 0.24 g を徐々に添加し、15 分間静置した。その後、同温度で 2-フルオロベンジルブromide 0.75 g を滴下し、液温を室温に戻しながら 12 時間反応させた。反応終了後、0 °C まで冷却し、ジエチルエーテル 100 ml および塩化アンモニウム水溶液 20 ml を加えて抽出した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝1／1）で精製して、油状の目的物 0.66 g を得た。このものの NMR スペクトルデータは以下の通りである。

$^1\text{H-NMR}$ [400 MHz, CDCl_3 , TMS, δ (ppm)]

4.60 (d, 1H; $J=11$ Hz), 4.73 (d, 1H; $J=11$ Hz), 6.63 (s, 1H), 6.97 (t, 1H; $J=9$ Hz), 7.05 (m, 1H), 7.21 (m, 1H), 7.34-7.44 (m, 5H), 7.54 (d, 1H; $J=5$ Hz), 7.7-8.3 (m, 3H), 8.68 (d, 1H; $J=6$ Hz), 8.72 (s, 1H)

【0118】

合成例 10：1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メチル N,N-ジエチルカルバメート（後記化合物 No. 94）の合成

1-(ナフタレン-1-イル)-1-(4-トリフルオロメチルピリジン-3-イル)メタノール 0.61 g と、テトラヒドロフラン 20 ml との混合溶液を 0 °C に冷却し、窒素雰囲気下で 60 % 水素化ナトリウム 0.24 g を徐々に添加し、5 分間静置した。その後、同温度で塩化 N,N-ジエチルカルバモイル 0.54 g を徐々に滴下した後、1 時間反応させ、液温を室温に戻しながら、さらに 12 時間反応させた。反応終了後、0 °C まで冷却し、酢酸エチルおよび塩化アンモニウム水溶液を加えて抽出した。有機層を水、次いで飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸ナトリウムを加えて乾燥した後、溶媒を減圧下留去し、残りをシリカゲルカラムクロマトグラフィー（溶離液：ノルマルヘキサン／酢酸エチル＝2／1）で精製して、無定形固体状の目的物 0.65 g を得た。このものの NMR スペクトルデータは以下の通りである。

$^1\text{H-NMR}$ [400 MHz, CDCl_3 , TMS, δ (ppm)]

0.9-0.95 (m, 3H), 1.0-1.1 (m, 3H), 3.1-3.3 (m, 4H), 6.99 (d, 1H; $J=7$ Hz), 7.31 (t, 1H; $J=8$ Hz), 7.4-7.5 (m, 2H), 7.54 (d, 1H; $J=6$ Hz), 7.7-7.8 (m, 2H), 7.9-8.0 (m, 2H), 8.72 (d, 1H; $J=5$ Hz), 8.80 (s, 1H)

【0119】

10

20

30

40

50

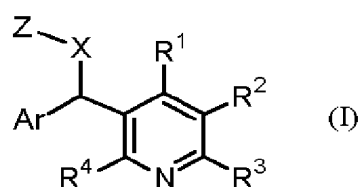
次に、前記式 (I) で表される本発明化合物の代表例を第1表に挙げるが、これら化合物は前記合成例或は前記した本発明化合物の種々の製造方法に基づいて製造することができ、尚、第1表中でMeはメチル基を、Etはエチル基を、c-Prはシクロプロピル基を、Phはフェニル基を各々表す。また、第1表中で6-Cl-1,3-ベンゾジオキサラン-5-イルとあるのは、6位にCl(塩素原子)が置換した1,3-ベンゾジオキサラン-5-イル基を表し、2-Me-1-ナフチルとあるのは、2位にMe(メチル基)が置換した1-ナフチル基を表し、2-F-ベンジルとあるのは、2位にF(弗素原子)が置換したベンジル基を表し、2-F-Phとあるのは、2位にF(弗素原子)が置換したフェニル基を表す(他の同様の記載もこれらに準じる)。

第1表中、アモルファスは無定形固体を表す。また、化合物No. 21と22、同No. 190と191は各々互いに光学異性体であり、化合物No. 192と193は互いにジアステレオマーである。

10

【0120】

【表1】



第1表

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
1	1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	
2	1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	162-167
3	6-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	
4	6-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
5	1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス
6	1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	123-125
7	1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	Cl	Cl	95-100
8	1-ナフチル	S	H	CF ₃	H	H	H	
9	2-Me-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
10	4-Me-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
11	2-Cl-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
12	4-Cl-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
13	6-Cl-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
14	2-OMe-1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	
15	1-ナフチル	O	H	c-Pr	H	H	H	

10

20

30

40

【 0 1 2 1 】

【 表 2 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
16	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	116-117
17	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	125-130
18	1-ナフチル	O	H	SMe	H	H	H	190-210
19	1-ナフチル	O	H	OMe	H	H	H	207-220
20	1-ナフチル	O	H	SEt	H	H	H	
21	1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	143-151
22	1-ナフチル	O	H	CF ₃	H	H	H	137-141
23	1-ナフチル	O	H	CF ₃	Me	H	H	
24	1-ナフチル	O	H	CF ₃	SMe	H	H	
25	1-ナフチル	O	H	CF ₃	Cl	H	H	
26	3-Br-キノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	アモルファス
27	3-Cl-キノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
28	3-F-キノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
29	キノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	174-177
30	キノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	
31	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	76-81
32	インダン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	118
33	インダン-4-イル	O	H	c-Pr	H	H	H	

10

20

30

40

【 0 1 2 2 】

【 表 8 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
34	インダン-4-イル	O	H	SMe	H	H	H	
35	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス
36	5-Br-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	100-103
37	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	アモルファス
38	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	SMe	H	H	H	
39	1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	126-128
40	1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	
41	4-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	130-138
42	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	125-127
43	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス
44	ベンゾ チオフェン-3-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
45	ベンゾ チオフェン-3-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス

10

20

30

40

【 0 1 2 3 】

【 表 4 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
46	1,2,3,4-テトラヒドロ ナフタレン-5-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
47	イントール-1-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
48	1-Me-イントール-3-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
49	1-Me-イントール-3-イル	O	H	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス
50	イソキノリン-4-イル	O	H	CF ₃	H	H	H	
51	1,3-ベンゾ ジオキサレン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	Cl	アモルファス
52	1,3-ベンゾ ジオキサレン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	油状
53	6-Cl-1,3-ベンゾ ジオキサレン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	Cl	136-140
54	6-Cl-1,3-ベンゾ ジオキサレン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	163-184
55	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	Cl	135-140
56	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	133-134
57	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	F	
58	2-Me-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
59	3-Me-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
60	4-Me-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
61	2-Cl-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	

10

20

30

40

【 0 1 2 4 】

【 表 5 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
62	4-Cl-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
63	5-Cl-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
64	4-OMe-1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
65	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	Cl	Cl	
66	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CF ₃	Me	H	H	
67	1-ナフチル	O	CONMe ₂	c-Pr	H	H	H	
68	1-ナフチル	S	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	151.5-153
69	1-ナフチル	S	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	136-143
70	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	Cl	123-125
71	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	124-127
72	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CO-(1-テオ モルホリニル)	CF ₃	H	H	H	
73	5-Cl-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
74	1-ナフチル	O	CONMe ₂	SMe	H	H	H	55-59
75	1-ナフチル	O	CONMe ₂	OMe	H	H	H	156-165
76	1-ナフチル	O	CONMe ₂	SEt	H	H	H	
77	3-Br-キノリン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	153-154

10

20

30

40

【 0 1 2 5 】

【 表 6 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
78	3-Cl-キノリン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
79	3-F-キノリン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
80	3-Br-キノリン-4-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
81	3-Br-キノリン-4-イル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
82	キノリン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	アモルファス
83	キノリン-4-イル	O	CO-イソプロピル	CF ₃	H	H	H	
84	キノリン-4-イル	O	CONHEt	CF ₃	H	H	H	
85	キノリン-4-イル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
86	キノリン-4-イル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	
87	1-ナフチル	O	CONHEt	CF ₃	H	H	H	125-128
88	1-ナフチル	O	CO-ph	CF ₃	H	H	H	アモルファス
89	1-ナフチル	O	CH ₂ -シクロプロピル	CF ₃	H	H	H	アモルファス
90	1-ナフチル	O	CONHMe	CF ₃	H	H	H	アモルファス
91	1-ナフチル	O	2-F-ベンジル	CF ₃	H	H	H	油状
92	1-ナフチル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	油状
93	1-ナフチル	O	COSMe	CF ₃	H	H	H	
94	1-ナフチル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	アモルファス
95	1-ナフチル	O	2-Me-2-プロピル	CF ₃	H	H	H	油状
96	6-メチル-1,3- ベンゾジオキサレン -5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	アモルファス

10

20

30

40

【 0 1 2 6 】

【 表 7 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
97	1-ナフチル	O	CH ₂ -(2-ヒ°リジ°ル)	CF ₃	H	H	H	48-53
98	1-ナフチル	O	3,3-Me ₂ -アクリロイル	CF ₃	H	H	H	油状
99	1-ナフチル	O	2-エボ°キシフ°ロヒ°ル	CF ₃	H	H	H	アモルファス
100	1-ナフチル	O	CO-(2-Cl-3-ヒ°リジ°ル)	CF ₃	H	H	H	175-190
101	1-ナフチル	O	2-フ°ロヒ°ニル	CF ₃	H	H	H	51-55
102	1-ナフチル	O	CH ₂ SMe	CF ₃	H	H	H	油状
103	1-ナフチル	O	S(O)Et	CF ₃	H	H	H	105-111
104	1-ナフチル	O	2,2-Me ₂ -フ°チロイル	CF ₃	H	H	H	アモルファス
105	1-ナフチル	O	CH ₂ CO ₂ Me	CF ₃	H	H	H	アモルファス
106	1-ナフチル	O	3-Cl-ベンジ°ル	CF ₃	H	H	H	115-120
107	1-ナフチル	O	4-Cl-ベンジ°ル	CF ₃	H	H	H	116-118
108	1-ナフチル	O	2-Br-ベンジ°ル	CF ₃	H	H	H	135-140
109	1-ナフチル	O	2-Br-2-Me-フ°ロヒ°オニル	CF ₃	H	H	H	油状
110	1-ナフチル	O	4-CN-ベンジ°ル	CF ₃	H	H	H	161-164
111	1-ナフチル	O	CONH(p-トリル)	CF ₃	H	H	H	169-185

10

20

30

【 0 1 2 7 】

【 表 8 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
112	1-ナフチル	O	CONH(イソプロピル)	CF ₃	H	H	H	159-167
113	1-ナフチル	O	CONMe(Et)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
114	1-ナフチル	O	4-F-ベンジル	CF ₃	H	H	H	63-71
115	1-ナフチル	O	3-F-ベンジル	CF ₃	H	H	H	96-98
116	1-ナフチル	O	CONEt(シクロヘキシル)	CF ₃	H	H	H	128-133
117	1-ナフチル	O	CO-(1-アゼチニル)	CF ₃	H	H	H	114-117
118	1-ナフチル	O	CO-(1-ヒロリニル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
119	1-ナフチル	O	CO-(1-モルホリニル)	CF ₃	H	H	H	
120	1-ナフチル	O	CO-(1-チオモルホリニル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
121	1-ナフチル	O	CONMe(ph)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
122	1-ナフチル	O	CONMe(2-F-ph)	CF ₃	H	H	H	
123	1-ナフチル	O	CONMe(4-Cl-ph)	CF ₃	H	H	H	
124	1-ナフチル	O	CONMe(4-I-ph)	CF ₃	H	H	H	
125	1-ナフチル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	121-129

10

20

30

【 0 1 2 8 】

【 表 9 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点℃)
126	インダン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	115.7
127	インダン-4-イル	O	CONMe ₂	c-Pr	H	H	H	
128	インダン-4-イル	O	CONMe ₂	SMe	H	H	H	
129	インダン-4-イル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	
130	インダン-4-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
131	インダン-4-イル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
132	インダン-4-イル	O	4-Cl-ベンジル	CF ₃	H	H	H	
133	インダン-4-イル	O	CO-(1-ホルリニル)	CF ₃	H	H	H	
134	1-ナフチル	O	CO-(2-フリル)	CF ₃	H	H	H	105-120
135	1-ナフチル	O	CO-(1-ナフチル)	CF ₃	H	H	H	122-126
136	1-ナフチル	O	2-プロモアリル	CF ₃	H	H	H	油状
137	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	油状
138	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CONHEt	CF ₃	H	H	H	アモルファス
139	5-Br-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	120-124
140	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	147-151

10

20

30

40

【 0 1 2 9 】

【 表 1 0 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
141	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CONHMe	CF ₃	H	H	H	120.5-122
142	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	油状
143	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONHMe	CF ₃	H	H	H	
144	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
145	5-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	SMe	H	H	H	
146	1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	油状
147	1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CO- (1-ヒ°ロリジ°ニル)	CF ₃	H	H	H	
148	1,3-ベンゾ ジ オキサラン-4-イル	O	CO- (1-モルホリニル)	CF ₃	H	H	H	
149	6-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CO- (1-ヒ°ロリジ°ニル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
150	4-Me-1,3-ベンゾ ジ オキサラン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	アモルファス
151	1-ナフチル	O	COCH ₂ Cl	CF ₃	H	H	H	アモルファス
152	1-ナフチル	O	COCO ₂ Et	CF ₃	H	H	H	アモルファス

10

20

30

40

【 0 1 3 0 】

【 表 1 1 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
153	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	アモルファス
154	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
155	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	CONHMe	CF ₃	H	H	H	
156	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	
157	2,2-F ₂ -1,3-ベンゾ ジ オキサレン-4-イル	O	4-F-ベンジル	CF ₃	H	H	H	
158	ベンゾチオフェン-3-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	Cl	112-115
159	ベンゾチオフェン-3-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
160	1,2,3,4-テトラヒドロ ナフタレン-5-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
161	1,2,3,4-テトラヒドロ ナフタレン-5-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
162	インドール-1-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
163	インドール-1-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
164	インドール-1-イル	O	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
165	インドール-1-イル	O	CSNMe ₂	CF ₃	H	H	H	
166	1-Me-インドール-3-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	

10

20

30

40

【 0 1 8 1 】

【 表 1 2 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	Ar	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
167	1-Me-インドール-3-イル	O	CONEt ₂	CF ₃	H	H	H	
168	イソキノリン-4-イル	O	CONMe ₂	CF ₃	H	H	H	
169	イソキノリン-4-イル	O	CO-イソプロピル	CF ₃	H	H	H	
170	1-ナフチル	O	CO-(1-アミノエチル)	CF ₃	H	H	H	
171	1-ナフチル	O	CO-(1-アミノ-2-Me-プロピル)	CF ₃	H	H	H	
172	1-ナフチル	S	Me	CF ₃	H	H	H	
173	1-ナフチル	S	CO-シクロプロピル	CF ₃	H	H	H	
174	1-ナフチル	S	CO-Me	CF ₃	H	H	H	67-80
175	1-ナフチル	S	ベンジル	CF ₃	H	H	H	
176	1-ナフチル	S	CONHEt	CF ₃	H	H	H	
177	1-ナフチル	O	Et	CF ₃	H	H	H	油状
178	1-ナフチル	S	CONHMe	CF ₃	H	H	H	
179	1-ナフチル	O	CSNHEt	CF ₃	H	H	H	
180	1-ナフチル	O	CSNHMe	CF ₃	H	H	H	
181	1-ナフチル	S	CSNHEt	CF ₃	H	H	H	
182	1-ナフチル	S	CSNHMe	CF ₃	H	H	H	
183	1-ナフチル	O	H	Et	H	H	H	244-248
184	1-ナフチル	O	CONMe ₂	Et	H	H	H	アモルファス

10

20

30

40

【 0 1 3 2 】

【 表 1 3 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
185	1-ナフチル	O	CO-(c-Pr)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
186	1-ナフチル	O	H	Me	H	H	H	178-183
187	1-ナフチル	O	CONMe ₂	Me	H	H	H	アモルファス
188	1-ナフチル	O	CONHEt	Me	H	H	H	129.5-131
189	1-ナフチル	O	ベンジール	Me	H	H	H	
190	1-ナフチル	O	CONH-(s) -α-メチルベンジール	CF ₃	H	H	H	57-67
191	1-ナフチル	O	CONH-(s) -α-メチルベンジール	CF ₃	H	H	H	55-65
192	1-ナフチル	O	CO-(1-Cl-エチル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
193	1-ナフチル	O	CO-(1-Cl-エチル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
194	6-Br-ベンゾ ジ オキサニル-5-イル	O	CONMe ₂	Me	H	H	H	
195	6-Cl-ベンゾ ジ オキサニル-5-イル	O	CONMe ₂	Me	H	H	H	
196	ベンゾ ジ オキサニル -5-イル	O	CONMe ₂	Me	H	H	H	

10

20

30

【 0 1 3 3 】

【 表 1 4 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
197	1-ナフチル	O	H	-CH=CH ₂	H	H	Cl	143-150
198	1-ナフチル	O	H	I	H	H	F	116-120
199	1-ナフチル	O	CONMe ₂	I	H	H	F	123-127
200	1-ナフチル	O	CO-(1-Me-2-ピロリル)	CF ₃	H	H	H	アモルファス
201	1-ナフチル	O	CO-(1-イミダゾリル)	CF ₃	H	H	H	128-132
202	1-ナフチル	O	H	SOMe	H	H	H	
203	1-ナフチル	O	CONMe ₂	SOMe	H	H	H	アモルファス
204	1-ナフチル	O	H	Br	H	H	H	155-160
205	1-ナフチル	O	CONMe ₂	Br	H	H	H	115-123
206	1-ナフチル	O	CONHEt	Br	H	H	H	120-128
207	1-ナフチル	O	CONEt ₂	Br	H	H	H	アモルファス
208	1-ナフチル	O	CONHMe	Br	H	H	H	134-136
209	1-ナフチル	O	4-Cl-ベンジール	Br	H	H	H	
210	1-ナフチル	O	ベンジール	Br	H	H	H	
211	1-ナフチル	O	CO-イソプロピル	Br	H	H	H	
212	1-ナフチル	O	CONEt ₂	Cl	H	H	H	122-127
213	1-ナフチル	O	H	Cl	H	H	H	188-190

10

20

30

【 0 1 3 4 】

【 表 1 5 】

第1表 (つづき)

化合物 No.	A r	X	Z	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	物性 (融点°C)
214	1-ナフチル	O	CONHEt	Cl	H	H	H	
215	1-ナフチル	O	CONHMe	Cl	H	H	H	
216	1-ナフチル	O	ベンゾール	Cl	H	H	H	
217	1-ナフチル	O	CONMe ₂	Cl	H	H	H	115-116
218	1-ナフチル	O	CONMe ₂	CN	H	H	H	アモルファス
219	1-ナフチル	O	H	CN	H	H	Cl	133-141
220	1-ナフチル	O	CONEt ₂	CN	H	H	H	アモルファス
221	1-ナフチル	O	CO-(c-Pr)	CN	H	H	H	
222	1-ナフチル	O	4-F-ベンゾール	CN	H	H	H	
223	1-ナフチル	O	ベンゾール	CN	H	H	H	
224	1-ナフチル	O	CO-2-チエニル	CF ₃	H	H	H	
225	1-ナフチル	O	CO-2-ピリジニル	CF ₃	H	H	H	
226	1-ナフチル	O	CO-3-フリル	CF ₃	H	H	H	
227	1-ナフチル	O	CO-(2-Me -4-チアゾリル)	CF ₃	H	H	H	
228	1-ナフチル	O	CO-3-ピリジニル	CF ₃	H	H	H	
229	1-ナフチル	O	CO-(4-CF ₃ -3-ピリジニル)	CF ₃	H	H	H	
230	1-ナフチル	O	CO-(5-CF ₃ -2-ピリジニル)	CF ₃	H	H	H	

10

20

30

40

【0135】

次に本発明の試験例を記載する。

試験例 1

1/170, 000ヘクターロットに畑作土壌をつめ、各種植物の種子を播種した。その後、植物が一定の葉令（（1）ノビエ1. 3～2. 2葉期、（2）メヒシバ1. 1～2. 0葉期、（3）アオゲイトウ0. 1～0. 2葉期、（4）アメリカキンゴジカ0. 1～0. 3葉期、（5）イチビ0. 2～0. 3葉期、（6）オナモミ0. 2～0. 3葉期、（7）イネ1. 2～1. 8葉期、（8）コムギ1. 4～2. 3葉期、（9）トウモロコシ2. 1～2. 6葉期、（10）ダイズ0. 1～0. 2葉期）に達したとき、本発明化合物を通常の製剤方法に準じて調製した水和剤又は乳剤を所定有効成分量となるように秤量し、

50

1ヘクタール当り500リットルの水に希釈した。更にその希釈液に対して農業用展着剤を0.1容量%加え、小型スプレーで茎葉処理した。

【0186】

薬剤処理後18～28日目に各種植物の生育状態を肉眼観察し、0（無処理区と同等）～100（完全枯殺）の抑草率（%）で除草効果を評価し、第2表の結果を得た。第2表中、各種植物は以下のように略記する。

【0187】

（1）ノビエ：EC、（2）メヒシバ：DI、（3）アオグイトウ：AM、（4）アメリカキンゴジカ：SI、（5）イチビ：AB、（6）オナモミ：XA、（7）イネ：RC、（8）コムギ：WH、（9）トウモロコシ：CR、（10）ダイズ：SY

10

【0188】

【表16】

第2表

化合物 No.	有効成分 分量 (g/ha)	抑 草 率 (%)										調 査 日
		EC	DI	AM	SI	AB	XA	RC	WH	CR	SY	
56	1000	90	70	80	80	80	30	0	0	0	0	21
82	1000	50	80	80	80	90	60	10	50	40	-	21
88	1000	40	10	70	50	100	0	0	0	0	0	21
89	1000	60	60	80	80	100	0	0	0	0	0	21
90	1000	90	80	80	80	90	90	20	0	0	0	21
91	1000	60	70	80	80	40	20	0	0	0	0	21
92	1000	90	70	80	80	80	0	0	10	20	0	21
95	1000	80	0	80	60	100	0	0	0	0	0	21
98	1000	60	60	80	70	90	0	0	0	0	0	21
102	1000	40	0	80	60	0	60	0	0	0	10	21
104	1000	0	70	80	60	90	0	0	-	0	0	21
109	1000	0	70	60	60	70	0	0	0	0	0	21
113	1000	50	60	50	60	70	0	0	0	0	10	21
117	1000	80	0	70	60	90	0	0	0	0	70	21
125	1000	60	0	40	60	70	70	0	0	0	0	21
126	1000	60	60	80	60	80	70	0	0	20	0	21
153	1000	50	95	80	80	90	-	10	30	30	70	23
218	500	50	70	20	80	70	80	20	20	10	40	18
220	500	60	80	50	70	50	70	40	20	10	50	22

10

20

30

40

【 0 1 3 9 】

試験例 2

1 / 1 7 0 , 0 0 0 ヘクタールポットに畑作土壌をつめ、各種植物の種子（ノビエ、メヒシバ、アオケイトウ、アメリカキンゴジカ、イチビ、オナモミ、イネ、コムギ、トウモロコシ及びひタイズ）を播種した。播種翌日、本発明化合物を通常の製剤方法に準じて調製した水和剤又は乳剤を所定有効成分量となるように秤量し、1ヘクタール当り1、500リ

50

ットルの水に希釈し、小型スプレーで土壌処理した。

薬剤処理後20～23日目に各種植物の生育状態を肉眼観察し、0（無処理区と同等）～100（完全枯殺）の抑草率（％）で除草効果を評価し、第3表の結果を得た。第3表中、各種植物は前記試験例1と同様に略記する。

【0140】

【表17】

第3表

化合物 No.	有効成分 分量 (g/ha)	抑草率 (%)										調査日
		EC	DI	AM	SI	AB	XA	RC	WH	CR	SY	
52	2000	80	90	90	90	-	0	80	-	0	0	21
54	2000	70	100	70	0	80	0	0	-	0	0	21
56	1000	60	90	80	90	90	0	10	-	0	0	20
71	1000	50	80	70	10	100	0	0	-	20	0	20
82	1000	60	90	80	80	0	0	20	0	20	0	20
87	1000	90	80	30	50	0	0	0	0	40	0	21
90	1000	90	100	80	100	90	0	0	10	40	0	21
91	1000	30	60	60	80	0	0	0	0	10	0	21
92	1000	80	70	80	80	-	0	0	0	10	0	21

10

20

30

【0141】

【表18】

第3表 (つづき)

化合物 No.	有効成分 分量 (g/ha)	抑 草 率 (%)										調 査 日
		EC	DI	AM	SI	AB	XA	RC	WH	CR	SY	
94	1000	100	100	60	80	0	0	0	20	10	0	21
96	1000	100	100	90	70	50	0	40	10	20	0	21
98	1000	70	80	-	70	0	0	10	0	0	0	21
102	1000	90	90	-	60	-	0	20	10	10	0	21
109	1000	60	80	70	60	0	0	10	0	0	0	21
112	1000	20	80	60	30	0	0	10	0	0	0	21
117	1000	100	90	70	40	60	0	10	0	20	0	23
118	1000	90	90	50	50	0	0	0	0	0	0	23
125	1000	-	90	20	50	30	0	10	10	0	0	21
126	1000	-	90	50	60	80	60	80	70	60	0	21
137	1000	80	90	40	40	0	0	0	0	0	0	21
139	1000	80	90	60	80	10	0	10	0	40	0	21
140	1000	50	70	60	60	0	0	0	0	0	0	21
142	1000	90	90	40	80	0	0	50	0	10	0	21
146	1000	90	90	90	80	40	0	50	0	20	0	21
149	1000	60	80	50	50	0	0	0	0	0	0	21
150	1000	90	90	70	30	0	0	50	0	0	0	21
153	1000	100	100	60	90	100	-	10	20	10	10	20
218	500	80	90	30	40	30	10	60	20	30	10	21

10

20

30

40

【 0 1 4 2 】

試験例 8

1 / 1, 0 0 0, 0 0 0ヘクタールポットに水田土壌を詰め、ノビエ及びホタルイの種子を播種し、その上に軽く覆土した。その後湛水深0.5～1cmの状態を温室内に静置し、翌日又は2日後にウリカワの塊茎を植え込んだ。その後湛水深を3～4cmに保ち、ノビエ及びホタルイが0.5葉期、ウリカワが初生葉期に達した時点で、本発明化合物を通

50

常の製剤方法に準じて調製した水和剤又は乳剤の水希釈液を、所定有効成分量になるようにビペットで均一に滴下処理した。また1／1，000，000ヘクタールポットに水田土壌を詰め、代かきを行い、湛水深を3～4cmとし、翌日に2葉期のイネ（品種：日本晴）を移植深3cmに移植した。移植後4日目に本発明化合物を前述と同様に処理した。葉剤処理後14日目にノビエ、ホタルイ及びウリカワの生育状態を、葉剤処理後21日目にイネの生育状態を各々肉眼観察し、0（無処理区と同等）～100（完全枯殺）の抑草率（％）で評価し、第4表の結果を得た。第4表中、各種植物は以下のように略記する。（1）ノビエ：EC、（2）ホタルイ：SC、（3）ウリカワ：SA、（4）イネ：OS
【0143】
【表19】

第4表

化合物 No.	有効成分量 (g/ha)	抑 草 率 (%)			
		EC	SC	SA	OS
6	2000	70	90	30	0
17	2000	40	95	0	-
18	2000	60	30	40	-
32	2000	90	95	70	-
39	2000	50	90	95	-
54	500	95	95	0	20
56	500	100	90	40	0
69	250	98	20	-	0
71	500	100	90	80	0
74	500	60	70	20	0
82	500	-	95	60	5
87	500	-	70	0	10
88	250	98	30	0	-
90	250	100	60	0	-
96	250	100	50	20	-
97	250	100	0	20	-
102	250	95	30	-	-
113	250	100	85	0	-
114	250	100	20	0	-
117	500	100	95	98	10
118	500	100	95	90	0

10

20

30

40

【 0 1 4 4 】

【 表 2 0 】

第4表 (つづき)

化合物 No.	有効成分量 (g/ha)	抑 草 率 (%)			
		EC	SC	SA	OS
120	500	100	85	-	20
121	500	100	-	50	0
125	500	100	85	0	0
126	500	100	95	90	30
135	500	100	30	0	0
136	500	100	10	0	0
137	500	100	90	50	10
138	500	50	85	0	0
139	500	-	90	50	30
140	500	100	90	90	0
142	500	100	85	90	35
146	500	100	85	90	20
149	500	98	30	0	20
150	500	100	50	0	10
153	500	100	90	30	10
185	250	100	50	0	0
187	500	90	70	100	0
188	500	70	70	95	0
190	2000	70	20	0	-
204	2000	60	80	-	-
205	250	98	80	-	0

10

20

30

40

【 0 1 4 5 】

【 表 2 1 】

第4表 (つづき)

化合物 No.	有効成分量 (g/ha)	抑 草 率 (%)			
		EC	SC	SA	OS
206	250	100	60	-	20
207	250	100	40	-	0
208	250	100	60	-	0
212	250	100	-	-	10
213	2000	30	95	0	-
217	250	100	100	10	0
218	250	98	80	-	10
220	250	100	70	-	0

10

20

【0146】

次に、本発明の製剤例を記載する。

【0147】

製剤例1

- (1) 本発明化合物 75 重量部
 (2) グロボンT-77 (商品名; ローヌ・プーラン社製) 14.5 重量部
 (3) NaCl 10 重量部
 (4) デキストリン 0.5 重量部

以上の各成分を高速混合細粒機に入れ、さらにそこへ20%の水を加え造粒、乾燥して粒水和剤が得られる。

30

【0148】

製剤例2

- (1) カオリン 78 重量部
 (2) ラベリンFAN (商品名; 第一工業製薬(株)製) 2 重量部
 (3) ソルポール5089 (商品名; 東邦化学工業(株)製) 5 重量部
 (4) カープレックス (商品名; 塩野義製薬(株)製) 15 重量部

以上、(1)～(4)の成分の混合物と本発明化合物とを9:1の重量割合で混合して水和剤が得られる。

【0149】

製剤例3

- (1) ハイフィラーNO. 10 (商品名; 松村産業(株)製) 33 重量部
 (2) ソルポール5050 (商品名; 東邦化学工業(株)製) 8 重量部
 (3) ソルポール5078 (商品名; 東邦化学工業(株)製) 4 重量部
 (4) 本発明化合物 0 重量部

40

以上の(1)～(4)の各成分を混合して水和剤が得られる。

【0150】

製剤例4

- (1) 本発明化合物 4 重量部
 (2) ベントナイト 30 重量部

50

- | | | |
|-----------------------------------|----------|--|
| (3) 炭酸カルシウム | 61.5 重量部 | |
| (4) トキサノンGR-81A (商品名: 三洋化成工業(株)製) | 3 重量部 | |
| (5) リグニンスルホン酸カルシウム塩 | 1.5 重量部 | |

予め粉碎した(1)と、(2)及び(3)とを混合し、そこに(4)、(5)及び水を加えて混合し、押出し造粒する。その後、乾燥、整粒して粒剤が得られる。

【0151】

製剤例5

- | | | |
|----------------------------------|--------|----|
| (1) 本発明化合物 | 30 重量部 | |
| (2) ジークライト (商品名: ジークライト(株)製) | 60 重量部 | |
| (3) ニューカルゲン WG-1 (商品名: 竹本油脂(株)製) | 5 重量部 | 10 |
| (4) ニューカルゲン FS-7 (商品名: 竹本油脂(株)製) | 5 重量部 | |

(1)、(2)及び(3)を混合し、粉碎機を通した後、(4)を加えて混練後、押出し造粒する。その後、乾燥、整粒して粒水和剤が得られる。

【0152】

製剤例6

- | | | |
|-----------------------------------|--------|----|
| (1) 本発明化合物 | 28 重量部 | |
| (2) ソフロポールFL (商品名: ローヌ・フーラン社製) | 2 重量部 | |
| (3) ソルポール355 (商品名: 東邦化学工業(株)製) | 1 重量部 | |
| (4) IPソルベント1620 (商品名: 出光石油化学(株)製) | 32 重量部 | |
| (5) エチレングリコール | 6 重量部 | 20 |
| (6) 水 | 31 重量部 | |

以上の(1)～(6)の成分を混合し、湿式粉碎機(タイノーミル)を用いて粉碎して水性懸濁剤が得られる。

フロントページの続き

(51)Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
A 0 1 N 47/20	A 0 1 N 47/16	A
C 0 7 D 213/32	A 0 1 N 47/16	⌘
C 0 7 D 213/61	A 0 1 N 47/20	B
C 0 7 D 213/68	C 0 7 D 213/32	
C 0 7 D 213/70	C 0 7 D 213/61	
C 0 7 D 213/79	C 0 7 D 213/68	
C 0 7 D 401/06	C 0 7 D 213/70	
C 0 7 D 401/12	C 0 7 D 213/79	
C 0 7 D 405/06	C 0 7 D 401/06	
C 0 7 D 405/12	C 0 7 D 401/12	
C 0 7 D 409/06	C 0 7 D 405/06	
C 0 7 D 417/12	C 0 7 D 405/12	
	C 0 7 D 409/06	
	C 0 7 D 417/12	

(72)発明者 佐野 真喜子

滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原産業株式会社中央研究所内

(72)発明者 大野 研

滋賀県草津市西浜川二丁目3番1号 石原産業株式会社中央研究所内

Fターム(参考) 4C055 AA01 BA01 BA02 BA16 BA39 BB14 CA01 CA02 CA03 CA16
 CA21 CA39 CA47 CA57 CB04 CB14 DA01 DA13 DA39 DB13
 DB14 EA01 FA03 FA11
 4C063 AA01 BB04 BB08 CC12 CC14 CC15 CC62 CC71 CC75 CC76
 CC82 CC94 DD03 DD06 DD12
 4H011 AB01 AB02 BA01 BA06 BB09 BB13 BC01 BC03 BC07 BC18
 BC19 DA02 DA15 DC01 DC04 DC06 DC07 DC08 DH03 DH10

【要約の続き】

であり、A、B、D、E、A'、B'、D'及びE'は各々酸素原子、硫黄原子、 $-N(R^6)-$ 、 $=N-$ 、 $=C(R^6)-$ 又は $-C(R^6)_2-$ であり、Xは酸素原子又は硫黄原子であり、⌘は水素原子、置換されてもよいアルキルなどであり、 R^1 はハロゲン、置換されてもよいアルキルなどであり、 R^2 は水素原子、ハロゲン、アルキルなどであり、 R^3 及び R^4 は各々水素原子、ハロゲン又はアルキルであり、 R^5 はハロゲン、アルキルなどであり、 R^6 は水素原子、ハロゲン、アルキル又はハロアルキルである]で表されるピリジン系化合物又はその塩。

【選択図】 なし